

Centro de Microanálisis de Materiales



Universidad Autónoma de Madrid

Departamento de Física de Materiales



Irradiación con iones pesados a altas energías en LiTaO_3 : guías de onda ópticas y sinergia de daño nuclear y electrónico

Memoria presentada para optar al Grado de

Doctor en Ciencias Físicas por

Victoria Tormo Márquez

Director: Dr. José Olivares Villegas (Instituto de Óptica, CSIC)

Tutor: Prof. Mercedes Carrascosa Rico

OCTUBRE 2019

A mi madre y a mi padre.

Por creer siempre en mí.

“Music is the arithmetic of sounds
as optics is the geometry of light.”

C. Debussy

Índice

AGRADECIMIENTOS	13
PREFACIO	15
PARTE I. INTRODUCCIÓN	21
CAPÍTULO 1. INTERACCIÓN ION-MATERIA: CONCEPTOS GENERALES	23
1.1. PODER DE FRENADO	23
1.2. GENERACIÓN DE DAÑO MEDIANTE IRRADIACIÓN CON IONES DE ALTA ENERGÍA.....	27
1.2.1. <i>Daño generado a través de colisiones elásticas nucleares.....</i>	<i>27</i>
1.2.2. <i>Daño generado a través de la excitación electrónica.....</i>	<i>29</i>
1.3. MODELOS TEÓRICOS SOBRE EL DAÑO ELECTRÓNICO.....	32
1.3.1. <i>Modelo de pico térmico (thermal spike).....</i>	<i>32</i>
1.3.2. <i>Modelo extendido del pico térmico.....</i>	<i>36</i>
1.3.3. <i>Modelo excitónico.....</i>	<i>40</i>
1.4. SIMULACIÓN DEL DAÑO INDUCIDO EN LA IRRADIACIÓN CON IONES DE ALTA ENERGÍA.....	42
CAPÍTULO 2. TANTALATO DE LITIO - LiTaO_3	43
2.1. ESTRUCTURA CRISTALINA Y PROPIEDADES.....	43
2.1.1. <i>Crecimiento y composición.....</i>	<i>45</i>
2.2. PROPIEDADES ÓPTICAS 2.2.1. <i>PROPIEDADES ÓPTICAS LINEALES.....</i>	<i>46</i>
2.2.2. <i>Propiedades ópticas no lineales.....</i>	<i>49</i>
2.3. OTRAS PROPIEDADES	53
CAPÍTULO 3. GUÍAS DE ONDA ÓPTICAS EN LiTaO_3	55

3.1. GUÍAS DE ONDA ÓPTICAS: DESCRIPCIÓN TEÓRICA	55
3.2.1. Intercambio protónico (<i>proton exchange</i>).....	61
3.2.2. Difusión de metales.....	63
3.2.3. Fabricación de guías con haces de iones.....	64
3.3. APLICACIONES DE GUÍAS DE ONDA DE LiTaO_3	68
PARTE II. TÉCNICAS EXPERIMENTALES	71
CAPÍTULO 4. IRRADIACIONES: ACELERADOR DE IONES	73
4.1 FUENTES DE IONES	73
4.1.1. Fuente duoplasmatron.....	74
4.1.2. Fuente de pulverización catódica negativa (<i>negative sputtering</i>)	74
4.2 TANQUE DE ACELERACIÓN	75
4.3 LÍNEAS EXPERIMENTALES	78
4.3.1. Línea Standard (<i>STD</i>).....	78
4.3.2. Línea Implantación (<i>IMP</i>).....	80
4.4 CONDICIONES DE IRRADIACIÓN	82
4.4.1. <i>SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter)</i>	83
CAPÍTULO 5. TÉCNICAS DE CARACTERIZACIÓN DE GUÍAS DE ONDA ÓPTICAS.....	87
5.1 TÉCNICA DE ACOPLLO POR PRISMA.....	87
5.1.1. Medida de índices efectivos: modos oscuros.....	87
5.1.2. Reconstrucción del índice de refracción: método <i>IWKB</i>	89
5.1.3. Medida de resonancias.....	90

5.2 PÉRDIDAS DE PROPAGACIÓN ÓPTICA	92
5.2.2. <i>Tratamientos térmicos (annealing)</i>	93
5.2.3. <i>Medida de pérdidas de propagación ópticas</i>	94
CAPÍTULO 6. TÉCNICAS DE CARACTERIZACIÓN DEL DAÑO	97
6.1 ESPECTROSCOPÍA DE RETRODISPERSIÓN RUTHERFORD EN CONFIGURACIÓN CANALIZADA (<i>RBS-CHANNELING</i>).....	97
6.1.1. <i>Fundamentos de RBS</i>	97
6.1.2. <i>RBS-channeling: medida y análisis de espectros</i>	99
6.1.3. <i>Descripción de los experimentos</i>	100
6.2 CARACTERIZACIÓN ÓPTICA	102
6.2.2. <i>Reflectancia y transmitancia insitu</i>	102
6.2.3. <i>Transmitancia exsitu</i>	106
PARTE III. RESULTADOS Y DISCUSIÓN	109
CAPÍTULO 7. GUÍAS DE ONDA ÓPTICAS EN LiTaO_3	111
7.1. INTRODUCCIÓN Y ESTRATEGIA.....	111
7.2. GUÍAS DE ONDA ÓPTICAS FABRICADAS EN LiTaO_3 CON IONES DE FLÚOR	113
7.2.1. <i>Irradiaciones en LiTaO_3 estequiométrico con F a 25 MeV a 45°</i>	113
7.2.2. <i>Irradiaciones en LiTaO_3 congruente con F a 20 MeV a 5°</i>	121
7.3. GUÍAS DE ONDA ÓPTICAS FABRICADAS EN LiTaO_3 CON IONES DE CARBONO	123
7.4. GUÍAS DE ONDA ÓPTICAS FABRICADAS EN LiTaO_3 CON IONES DE SILICIO	127
7.5. CAPA AMORFA EN LiTaO_3 : IRRADIACIONES CON IONES DE BROMO	132
7.6. PÉRDIDAS DE PROPAGACIÓN ÓPTICA	136

7.6.1. Guías de onda ópticas en LiTaO_3 fabricadas con iones de flúor.....	137
7.6.2. Guías de onda ópticas en LiTaO_3 fabricadas con iones de silicio.....	143
CAPÍTULO 8. SINERGIA ENTRE LOS DAÑOS NUCLEAR Y ELECTRÓNICO EN LiTaO_3	149
8.1. ÍNDICE DE REFRACCIÓN A TRAVÉS DE LA REFLECTANCIA IN SITU	149
8.2. EFECTO DEL ÁNGULO DE IRRADIACIÓN.....	158
8.3. EFECTO DEL DAÑO PREVIO DE TIPO NUCLEAR	164
CAPÍTULO 9. DAÑO EN LiTaO_3 Y COMPARACIÓN CON LiNbO_3.....	169
9.1. CINÉTICAS DE FORMACIÓN DEL DAÑO EN LiTaO_3 Y COMPARACIÓN CON LiNbO_3	169
9.2. UMBRAL DE AMORFIZACIÓN DE LiTaO_3	174
CAPÍTULO 10. RESULTADOS COMPLEMENTARIOS EN LiTaO_3	179
10.1. EFECTO DE LA TEMPERATURA DURANTE LA IRRADIACIÓN.....	179
10.2. CONDUCTIVIDAD ELÉCTRICA DE LA CAPA AMORFA EN LiTaO_3 Y LiNbO_3	185
CONCLUSIONES	191
REFERENCIAS.....	195
LISTA DE PUBLICACIONES	211

Agradecimientos

Después de tantos años, me cuesta creer estar al fin escribiendo estas palabras, y no resulta sencillo. No puedo evitar cierto sentimiento de pena al saber que aquí, con este manuscrito, acaba una de las etapas más relevantes de mi vida. En realidad, es una mezcla de muchos sentimientos. Pero echando la vista atrás y recordando todos los momentos vividos en la gran aventura que supone la tesis doctoral, sobre todo, me siento agradecida.

Quiero agradecer a mi director, José Olivares, la oportunidad de iniciarme en el mundo científico y guiarme a través de este largo camino, nunca exento de dificultades. También quiero agradecerle, José, todo lo que he podido aprender de ti, así como la paciencia que siempre has demostrado cuando las circunstancias me sobrepasaban. Siempre te estaré agradecida. Igualmente, quiero agradecerle a Mercedes Carrascosa, tutora de esta tesis, su constante atención y sus sabios consejos, siempre muy acertados, que lograron darme seguridad cada vez que lo necesité. También tengo que agradecer la financiación concedida por el Ministerio de Economía y Competitividad y la Comunidad de Madrid, sin la cual este trabajo no habría sido posible. Y a la Universidad Autónoma de Madrid, en especial al Portal Científico de la UAM, donde desempeñé un trabajo que, además de ayudarme económicamente, me resultó muy útil para darme una visión más amplia de la ciencia.

El CMAM ha sido mi segunda casa durante estos últimos años (mis padres dan fe de ello), y he llegado a considerar a mis compañeros de trabajo como mi familia científica. Quiero agradecer a todo el personal del CMAM la ayuda que me ha prestado a lo largo de este tiempo. Tengo que darle las gracias a Alessandro Zucchiatti, el que fuera director del Centro cuando comencé mi tesis, por sus valiosas lecciones. Y a Ángel Muñoz, por sus siempre acertadas palabras. También tengo que agradecer al equipo de técnicos al completo su trabajo, que es una parte muy importante y fundamental de esta tesis. A Manuel Díaz quiero agradecerle todo lo que me enseñó en mis inicios en el Centro, y todo su tiempo dedicado a ayudarme en la realización de los primeros experimentos y medidas. Manuel, sin ti no habría podido con esto. En especial (seguro que los demás sabrán perdonarme), quiero darle las gracias a Jaime, por su entusiasmo y alegría ante cualquier situación. No te olvidaré nunca. *Let there be rock*, amigo. Y a Nacer, por los pastelitos, que fueron también una parte fundamental de esta tesis. Gracias a Patricia y a Mary Carmen, por darme fuerzas siempre que las necesité. Gracias a Victor, porque el humor no está reñido con la ciencia. Gracias a José Miguel, por recordarme lo que de verdad importa. Y gracias a José Emilio, por su incondicional

ayuda. ¡El Beam Team permanece unido! Y gracias también a Marcelo y a Fernando, por su cariño.

También quiero agradecer a Mariano Jubera, de la Facultad de Ciencias, que me enseñara a caracterizar guías de onda ópticas, con infinita paciencia. Muchas gracias por tus consejos, me han servido bien. Y gracias a M^a Dolores Martín, mi profesora de Óptica de tercero. Sin duda, tus clases tienen la culpa de todo esto. No me olvido de mis amigos de la Facultad, mis compañeros de batalla desde el momento inicial. Gracias, al módulo roce en general y, en especial, a Albert, a Au, a Lozi, al Dr. Alarcón-Díez y a María. Gracias por ser y por estar. Os quiero. Tampoco me olvido de Juampa, gracias por nuestras charlas, siempre alentadoras.

Gracias, sobre todo, a mis padres. Gracias a mi madre, por no dejar que me rinda nunca y por enseñarme lo que es amar. Nunca imaginé escribir estas palabras echándote tanto de menos. Qué injusta es la vida a veces, ojalá te tuviera aquí. Te quiero, Mamá. Gracias a mi padre, por sujetarme desde que tengo uso de razón y cada vez que la he perdido, por enseñarme a perseguir siempre la mejor versión de mí misma. Te quiero, Papá. Gracias a los dos, por hacer que me convierta en quien soy hoy. Gracias a mi familia por todo su amor, que no es poco. Gracias a ti, Álex, por convertirte en mi salvador desde ese *script* maravilloso. Desde luego, eres mi suerte en esta vida. Y gracias a Tesla, por estar siempre a mi lado.

Gracias a todos los que creyeron en mí. Y también a los que no.

Prefacio

- Antecedentes y motivación

El tantalato de litio (LiTaO_3 : LT), junto con el niobato de litio (LiNbO_3 : LN), es uno de los materiales más importantes usados en las últimas décadas para aplicaciones de fotónica integrada debido a sus interesantes propiedades ferroeléctricas, optoelectrónicas y ópticas no lineales [1]. Sin embargo, principalmente debido a que la temperatura de Curie del LiTaO_3 ($T_c \sim 615\text{-}695^\circ\text{C}$) es demasiado baja respecto a las temperaturas utilizadas en las técnicas más extendidas de fabricación de guías de onda ópticas, se ha favorecido el uso de LiNbO_3 en el progreso de la tecnología de la óptica integrada. LiTaO_3 ofrece algunas ventajas evidentes en comparación con LiNbO_3 , como presentar una mayor resistencia al daño óptico (o efecto fotorrefractivo) y un rango de transmisión más amplio en el UV [2-4]. Por otro lado, cabe destacar la superioridad de LiTaO_3 en la generación de dominios ferroeléctricos, muy importantes para aplicaciones de óptica no lineal, más pequeños que los obtenidos en LiNbO_3 , permitiendo la fabricación de patrones de estos dominios ferroeléctricos de tamaño submicrométrico [5].

Por otro lado, durante muchos años la técnica de implantación iónica de iones ligeros ha demostrado ser un buen método para la fabricación de guías de onda ópticas en diversos materiales, con la ventaja de que se puede realizar a temperatura ambiente. La implantación con iones ligeros (H o He) con energía de unos pocos MeV hace uso del daño estructural generado por las colisiones elásticas al final de la trayectoria de los iones en el material (denominado daño nuclear). De esta manera, se forma una capa de daño enterrada con índice de refracción menor que el del sustrato, generando así una barrera óptica que da lugar a una guía de onda óptica en la superficie de la muestra [6]. Algunos estudios específicos se han publicado también sobre la implantación iónica en cristales de LiTaO_3 [7-9]. Sin embargo, las fluencias necesarias para conseguir un buen confinamiento óptico en estas guías a través de implantación con iones ligeros son muy altas, del orden de $10^{16}\text{-}10^{17}$ at/cm². Es relevante destacar que el uso de las capas de daño enterradas generadas mediante la implantación iónica ha demostrado mejorar y facilitar la producción de patrones de inversión de dominios ferroeléctricos en LiNbO_3 con tamaño nanométrico [10-12].

Recientemente, se ha demostrado que el uso de irradiaciones con iones más pesados ($A>10$) a altas energías (1 MeV/uma, también denominados *Swift Heavy Ions*, o SHI), en las que la pérdida de energía de los iones debido a procesos

electrónicos (S_e) alcanza valores muy elevados (de varios keV/nm), genera guías de onda ópticas de gran salto de índice de refracción y alto confinamiento de la luz, en LiNbO_3 [13-15] y otros óxidos [16-17]. La ventaja principal de este método es que se requieren fluencias de irradiación varios órdenes de magnitud menores que las fluencias necesarias en implantación con iones ligeros. En este caso, los defectos y el daño producido por los SHI en el material están relacionados con la alta densidad de energía electrónica depositada a lo largo de la traza del ion. Este tipo de daño se denomina daño electrónico para diferenciarlo del daño de tipo nuclear, que ocurre mayoritariamente al final de la trayectoria del ion.

Teniendo en cuenta que la deposición de energía electrónica de los SHI desempeña un papel fundamental en la generación del daño y los cambios estructurales inducidos en el material, es necesario el entendimiento riguroso de los mecanismos básicos en los procesos de daño. Aunque el origen del daño nuclear está razonablemente bien comprendido, los mecanismos de daño debido a excitaciones electrónicas no están del todo establecidos y todavía están en debate entre la comunidad científica [18-19]. El modelo de pico térmico es el modelo más reconocido que explica los distintos fenómenos observados en la irradiación con SHI y es por tanto en el que se basa el trabajo aquí presentado. Además, la sinergia existente entre los daños de tipo nuclear y electrónico es un tema actualmente de estudio en diversos materiales [20-23].

- Objetivos

Dado el gran interés que existe en la combinación de las excelentes propiedades ópticas y ferroeléctricas del LiTaO_3 con la microestructuración que se puede realizar a través de las irradiaciones con iones pesados de altas energías, el objetivo principal de la tesis que aquí se presenta es investigar la interacción ion-materia a través de las guías de onda ópticas generadas en LiTaO_3 por medio de irradiaciones con iones pesados a altas energías. Además del interés en este desarrollo desde el punto de vista tecnológico, el estudio que aquí se presenta, teniendo como referencia el amplio conocimiento previo que se tiene del LiNbO_3 , puede ayudar a comprender los mecanismos de generación del daño en la irradiación con iones pesados de altas energías en este tipo de materiales.

- Descripción de los capítulos

Esta tesis se ha estructurado en tres partes distintas, introducción, metodología y resultados, cuyo contenido se describirá a continuación. En la parte de la introducción (capítulos 1-3) se resumen los conceptos fundamentales para la comprensión del desarrollo de este trabajo. Primeramente, se explican brevemente las nociones fundamentales de la interacción ion-materia, definiendo el concepto de frenado de los iones y de qué manera éstos depositan su energía, dependiendo del rango de velocidades del ion, y generan daño en el material mediante interacciones tanto de carácter nuclear como electrónico. También, se exponen los principales modelos teóricos que explican el daño generado por los iones a través de las interacciones electrónicas con los átomos del material, puesto que es el que desempeña un papel fundamental a lo largo de este trabajo. A continuación, se hace una presentación del LiTaO_3 , que es el material usado en esta tesis, y sus principales propiedades, centrando la atención en las propiedades ópticas y en su comparación con el LiNbO_3 , utilizado como material de referencia. Por último, se dedica un apartado a la teoría de guías de onda ópticas de tipo planar, que son las que se estudian en este trabajo, así como una breve explicación de las técnicas de fabricación de guías de onda ópticas más utilizadas en LiTaO_3 y las aplicaciones más relevantes que tienen este tipo de dispositivos.

En la metodología (capítulos 4-6) se describen las técnicas experimentales utilizadas a lo largo de esta tesis. En el primer capítulo de esta parte se realiza una presentación del acelerador de iones del Centro de MicroAnálisis de Materiales¹, utilizado para las irradiaciones llevadas a cabo en este trabajo, explicando las distintas partes de las que consta y las líneas experimentales que se han usado, así como las condiciones de irradiación utilizadas. A continuación, se explican las técnicas de caracterización aplicadas para analizar las guías de onda ópticas y obtener tanto el perfil de índice de refracción como las pérdidas de propagación ópticas de cada una de las guías de onda fabricadas en LiTaO_3 . Finalmente, se exponen las técnicas utilizadas para estudiar el daño generado por los iones en el material.

¹ Centro de Microanálisis de Materiales (CMAM), Universidad Autónoma de Madrid (UAM), 28049 Madrid, Spain.

La parte de resultados (capítulos 7-10) se centra en exponer todos los resultados obtenidos a lo largo de esta tesis. Primero, se presentan los resultados referentes a las guías de onda ópticas generadas en LiTaO_3 por medio de irradiaciones con distintos iones a altas energías, exponiendo los diferentes procesos de daño que se observan en este material. A continuación, se presentan los resultados relacionados con la sinergia existente entre el daño electrónico y el daño nuclear, y la observación de este fenómeno en LiTaO_3 . También, se exponen los resultados relativos al estudio del daño inducido por los iones en este material, a través de distintas cinéticas de formación del daño en LiTaO_3 y su comparación con el LiNbO_3 , de las que se obtiene una estimación experimental del umbral de poder de frenado electrónico para la amorfización del LiTaO_3 . Finalmente, se presentan los resultados obtenidos en las irradiaciones con temperatura llevadas a cabo en LiTaO_3 con el fin de ampliar el estudio sobre la formación de defectos inducidos por los iones en este material y el efecto de la temperatura en dicho proceso. Además, se exponen los resultados obtenidos sobre las medidas eléctricas realizadas tanto en LiTaO_3 como en LiNbO_3 con el fin de caracterizar las propiedades de las capas amorfas generadas en estos materiales mediante la irradiación con iones pesados.

Referencias

1. T. Volk, M. Wöhlecke. *Lithium Niobate, Defects, Photorefractive and Ferroelectric Switching*. Springer Series in Materials Science, 115 (2008).
2. G. L. Tangonan, M. K. Barnoski, J. F. Lotspeich, A. Lee. *High optical power capabilities of Ti-diffused LiTaO_3 waveguide modulator structures*. Appl. Phys. Lett. 30 (1977).
3. I. Dolev, A. Ganany-Padowicz, O. Gayer, A. Arie, J. Mangin, G. Gadret. *Linear and nonlinear optical properties of $\text{MgO}:\text{LiTaO}_3$* . Appl. Phys. B 96 (2009).
4. Y. Kondo, Y. Fujii. *Temperature Dependence of the Photorefractive Effect in Proton-Exchanged Optical Waveguides Formed on Lithium Tantalate Crystals*. Jpn. J. Appl. Phys. 34 (1995).
5. K. Mizuuchi, K. Yamamoto, M. Kato. *Generation of ultraviolet light by frequency doubling of a red laser diode in a first-order periodically poled bulk LiTaO_3* . Appl. Phys. Lett. 70 (1997).
6. P. D. Townsend, P. J. Chandler, L. Zhang. *Optical effects of ion implantation*. Cambridge University Press (1994).

7. E. Glavas, L. Zhang, P. J. Chandler, P. D. Townsend. *Thermal stability of ion-implanted LiTaO₃ and LiNbO₃ optical waveguides*. Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 32 (1988).
8. V. V. Atuchin. *Causes of refractive indices changes in He-implanted LiNbO₃ and LiTaO₃ waveguides*. Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 168 (2000).
9. C. Mingotte. *Proton and helium implanted waveguides in pure and Nd-doped lithium tantalite*. Nucl. Instr. And Meth. in Phys. Res. B 229 (2005).
10. L. Jentjens, K. Peithmann, K. Maier, H. Steigerwald, T. Jungk. *Radiation-damage-assisted ferroelectric domain structuring in magnesium-doped lithium niobate*. Appl. Phys. B 95 (2009).
11. M. Lilienblum, A. Ofan, A. Hoffmann, O. Gaathon, L. Vanamurthy, S. Bakhru, H. Bakhru, R. M. Osgood, Jr., E. Soergel. *Low-voltage nanodomain writing in He-implanted lithium niobate crystals*. Appl. Phys. Lett. 96 (2010).
12. A. Ofan, M. Lilienblum, O. Gaathon, A. Sehrbrock, A. Hoffmann, S. Bakhru, H. Bakhru, S. Irsen, R. M. Osgood, Jr., E. Soergel. *Large-area regular nanodomain patterning in He-irradiated lithium niobate crystals*. Nanotechnology, 22 (2011).
13. J. Olivares, G. García, A. García-Navarro, F. Agulló-López, O. Caballero, A. García-Cabañes. *Generation of high confinement step-like optical waveguides in LiNbO₃ by swift heavy ion beam irradiation*. Appl. Phys. Lett. 86 (2005).
14. M. Jubera, J. Villarroel, A. García-Cabañes, M. Carrascosa, J. Olivares, F. Agullo-López, A. Méndez, J. B. Ramiro. *Analysis and optimization of propagation losses in LiNbO₃ optical waveguides produced by swift heavy-ion irradiation*. Appl. Phys. B 107 (2012).
15. J. Olivares, A. García-Navarro, G. García, A. Méndez, F. Agulló-López, A. García-Cabañes, M. Carrascosa, O. Caballero. *Nonlinear optical waveguides generated in lithium niobate by swift-ion irradiation at ultralow fluencies*. Opt. Lett. 32 (2007).
16. A. García-Navarro, J. Olivares, G. García, F. Agulló-López, S. García-Blanco, C. Merchant, J. S. Aitchison. *Fabrication of optical waveguides in KGW by swift heavy ion beam irradiation*. Nucl. Instrum. Method B 249 (2006).
17. J. Manzano-Santamaría, J. Olivares, A. Rivera, F. Agulló-López. *Electronic damage in quartz (c-SiO₂) by MeV ion irradiations: Potentiality for optical waveguiding applications*. Nucl. Instrum. Methods B. 272 (2012).
18. M. Toulemonde, W. Assmann, C. Dufour, A. Meftah, C. Trautmann. *Nanometric transformation of the matter by short and intense electronic excitation: Experimental data versus inelastic thermal spike model*. Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 277 (2012).
19. F. Agulló-López, A. Climent-Font, Á. Muñoz-Martín, J. Olivares, A. Zucchiatti. *Ion beam modification of dielectric materials in the electronic excitation regime: cumulative and exciton models*. Prog. Mater. Sci. 76 (2016).

20. W.J. Weber, E. Zarkadoula, O.H. Pakarinen, R. Sachan, M.F. Chisholm, P. Liu, H. Xue, K. Jin, Y. Zhang. *Synergy of elastic and inelastic energy loss on ion track formation in SrTiO₃*. Sci. Rep., 5 (2015).
21. P. Liu, Y. Zhang, H. Xue, K. Jin, M.L. Crespillo, X. Wang, W.J. Weber. *A coupled effect of nuclear and electronic energy loss on ion irradiation damage in lithium niobate*. Acta Mater., 105 (2016).
22. K. Jin, Y. Zhang, W.J. Weber. *Synergistic effects of nuclear and electronic energy deposition on damage production in KTaO₃*. Mater. Res. Lett., 6 (2018).
23. N. Sellami, M.L. Crespillo, Y. Zhang, W.J. Weber. *Two-stage synergy of electronic energy loss with defects in LiTaO₃ under ion irradiation*. Mater. Res. Lett., 6 (2018).

PARTE I. Introducción

En esta primera parte, se introducen diversos temas que son útiles para el entendimiento del trabajo presentado en esta tesis. Primeramente, se realiza un resumen relativo a la interacción de los iones con la materia, donde se explican los diferentes daños generados en el material, en el rango de interacciones nucleares y el rango de interacciones electrónicas. También, se resumen los principales modelos que explican la deposición de energía de los iones a través de interacciones electrónicas, puesto que en ella se basa el estudio de guías de onda ópticas realizado en este trabajo. A continuación, se presentará el LiTaO_3 , que es el material utilizado a lo largo de esta tesis, y sus principales propiedades. Por último, se describen los principios fundamentales de las guías de onda ópticas, además de las técnicas de fabricación más usadas y algunas aplicaciones de las guías de onda ópticas en LiTaO_3 .

Capítulo 1. Interacción ion-materia: conceptos generales

El trabajo realizado a lo largo de esta tesis hace uso de haces de iones acelerados y su interacción con la materia, tanto como herramienta de procesamiento como de posterior análisis. Por tanto, es necesario definir algunos términos que serán usados a lo largo de este trabajo, así como una introducción a la interacción ion-materia y a los parámetros que gobiernan este proceso.

1.1. Poder de frenado

El poder de frenado o “*stopping power*”, S , es una magnitud que resulta fundamental en cualquier proceso de interacción de los iones con los átomos de un material. Se define como la cantidad de energía que pierde el ion por unidad de longitud atravesada:

$$S = \frac{dE}{dx} \left(\frac{KeV}{nm} \right) \quad (1.1)$$

Los procesos involucrados en la interacción entre los iones acelerados y el material dependen principalmente de la velocidad del ion y de las cargas implicadas, tanto del ion incidente como de los átomos del material irradiado. De forma general, podemos afirmar que a bajas velocidades ($E < 0.01 \text{ MeV/uma}$) la pérdida de energía está dominada por el poder de frenado nuclear, S_n , que se produce por colisiones de los iones con los átomos del blanco. Dichas colisiones producen cambios abruptos en la energía del proyectil, así como en la dirección de su trayectoria. La creación de defectos debido a estas colisiones elásticas es una consecuencia directa de la interacción coulombiana entre los iones y los átomos del blanco [1–3]. Por otro lado, para altas velocidades del ion incidente ($E < 0.1 \text{ MeV/uma}$), la pérdida de energía está dominada por el poder de frenado electrónico, S_e , que se produce por las interacciones entre el ion y los electrones del material. Estos procesos electrónicos provocan una pérdida de energía suave y cuasi-continua, sin prácticamente alterar la dirección de la trayectoria del proyectil. Por lo tanto, el poder de frenado es una magnitud que depende de la velocidad de los iones. En la Figura 1.1 se muestra el poder de frenado para distintos iones en LiTaO_3 para

varias energías, donde se puede observar el comportamiento descrito, con las dos regiones diferenciadas: cuando la velocidad del ion es baja predomina el poder de frenado nuclear (línea discontinua), mientras que a altas velocidades predomina el poder de frenado electrónico (línea continua).

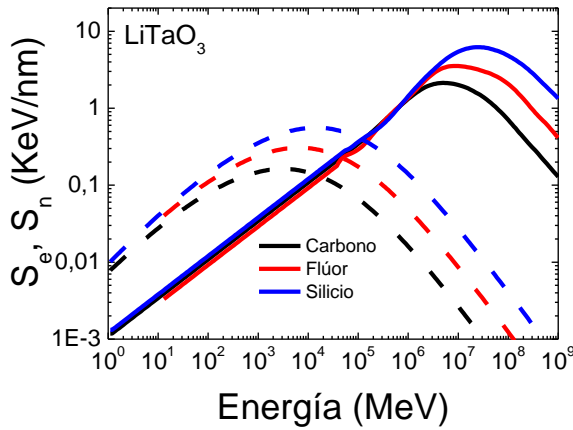


Figura 1.1. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea discontinua) para varios iones en LiTaO_3 , en función de la energía del ion incidente.

Si consideramos el caso de un ion de alta energía que penetra en un material sólido, en el cual va depositando su energía, podemos distinguir tres regímenes de velocidad:

1. Régimen de altas velocidades (Bethe-Bloch):

En el caso de velocidades muy altas ($v \gg v_0$, donde $v_0 \sim c/137$ es la velocidad de Bohr), el ion es completamente despojado de todos sus electrones de manera casi instantánea al penetrar en el material, por lo que se puede considerar como una carga puntual atravesando un gas de electrones. En esta etapa, la pérdida de energía, que es inversamente proporcional a la velocidad (energía) del proyectil, viene descrita por el modelo de Bethe-Bloch corregido [4]:

$$S = \frac{dE}{dx} = \frac{4\pi e^4 Z_2 Z_1^2 N}{m_e v^2} L(v) \quad (1.2)$$

donde m_e es la masa del electrón, Z_1 y Z_2 son los números atómicos del ion y los átomos del blanco, respectivamente, v es la velocidad del ion, N es la densidad atómica del material y $L(v)$ es el denominado número de frenado, que es un factor de corrección.

2. Régimen de energías intermedias (pico de Bragg):

A medida que el ion se va frenando y su velocidad se hace comparable a la de los átomos del material, la idea de un ion totalmente despojado de sus electrones ya no es válida, por lo que se debe modificar la expresión de Bethe-Bloch. Para este propósito, se suele utilizar el concepto de carga efectiva, Z_1^* , que puede ser calculado asumiendo que el ion pierde todos los electrones orbitales cuya velocidad sea menor que la del propio ion [5]. En este caso, consideramos un modelo atómico de tipo Thomas-Fermi, en el que la velocidad de los electrones es proporcional a $Z_1^{2/3}$ y que resulta en un valor fraccionado de la carga del ion:

$$\frac{Z_1^*}{Z_1} = 1 - e^{\left(\frac{-v}{v_0 Z_1^{2/3}}\right)} \quad (1.3)$$

Sustituyendo esta expresión en el modelo de Bethe-Bloch, se puede hacer una extensión del mismo hasta valores de la energía del ion donde no podría ser aplicado este modelo. Por lo tanto, en esta región de velocidades, hay dos efectos que compiten: el incremento del poder de frenado con la disminución de la energía del ion, y la disminución de su carga efectiva, que produce una disminución del poder de frenado. El punto en el que ambos efectos se compensan ($v_{pico} \approx 3v_0 Z_1^{2/3}$) es el denominado pico de Bragg, que constituye un máximo en la curva de poder de frenado frente a la energía del ion y es característico de todas las curvas de este tipo. Pasado el pico de Bragg, el ion sigue frenándose y su poder de frenado decrece rápidamente con la velocidad.

3. Régimen de bajas energías (colisiones nucleares):

Hasta este punto, el ion se ha decelerado de manera cuasi-continua y las colisiones con los núcleos del material son eventos muy poco probables, por lo que la trayectoria del ion permanece aproximadamente rectilínea. Sin embargo, al final de la trayectoria del ion, esto es, para energías por debajo del pico de Bragg ($E \sim 1$ KeV/uma), la contribución del poder de frenado nuclear ya no puede considerarse despreciable. Por tanto, el poder de frenado se debe calcular teniendo en cuenta tanto la contribución electrónica, S_e , como la nuclear, S_n . En la Figura 1.2 se

muestran las curvas de poder de frenado electrónico (en línea continua) y nuclear (en línea discontinua), calculadas utilizando el código SRIM (del cual se hablará en el apartado 1.4. También se indica un esquema de la trayectoria de los iones de F a 20 MeV en LiTaO₃ obtenida de las simulaciones en SRIM.

Con respecto al poder de frenado electrónico, en este rango de velocidades el ion puede ser considerado como neutro, por lo que S_e se describe en el marco de la teoría LSS (Linghard-Scharff-Schiott) [6], por la que el frenado electrónico es directamente proporcional a la velocidad del ion:

$$S_e = \frac{\xi_e q_e^2 a_0}{2\pi\epsilon_0^2} \frac{Z_1 Z_2}{(Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}} \frac{v}{v_0} \quad (1.4)$$

donde $\xi_e \approx Z_1^{1/6}$, q_e es la carga del electrón, ϵ_0 es la permitividad dieléctrica del vacío y a_0 es la longitud de Bohr.

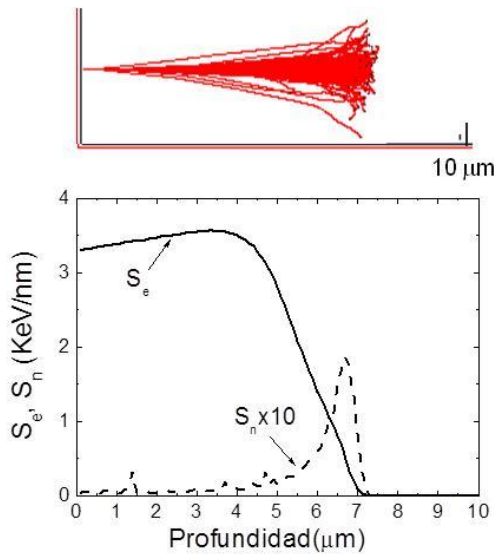


Figura 1.2. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea discontinua) de iones de F 20 MeV en LiTaO₃ a incidencia normal. Nótese que el poder de frenado nuclear se ha multiplicado por diez por claridad. También se muestra la trayectoria de los iones a su paso por el material.

La contribución del poder de frenado nuclear se puede entender como la energía que transfiere el ion incidente al átomo del blanco, considerando un potencial de tipo Coulomb apantallado por los electrones que rodean a ambas partículas. Dicho potencial puede expresarse en función de la distancia entre el ion y el átomo del blanco, r :

$$V(r) = \frac{Z_1 Z_2 e^2}{(4\pi\epsilon_0)^2 r} \exp\left(\frac{-r}{a_0} (Z_1^{2/3} + Z_2^{2/3})^{3/2}\right) \quad (1.5)$$

Como consecuencia de que, en este caso, las masas de las partículas involucradas son comparables, los procesos nucleares se relacionan con cambios abruptos en la dirección de la trayectoria de los iones, así como en la energía y el momento del proyectil después de cada colisión, hasta que los iones pierden toda su energía y se frenan completamente en el material. Un estudio detallado del poder de frenado nuclear se puede encontrar en la referencia [7].

1.2. Generación de daño mediante irradiación con iones de alta energía

Como se comentaba anteriormente, cuando un ion penetra en un material pierde energía a lo largo de su trayectoria, depositándola en los átomos del material. Esta deposición de energía se puede producir a partir de dos tipos de proceso: a través de colisiones elásticas o de interacciones electrónicas con los átomos del material, y se describen según el poder de frenado nuclear, S_n , y electrónico, S_e , respectivamente. A continuación, se expondrán brevemente los efectos que esta deposición de energía tiene sobre el material, incluyendo la formación de defectos puntuales.

1.2.1. Daño generado a través de colisiones elásticas nucleares

Las colisiones elásticas nucleares se pueden describir en un marco de mecánica clásica, no relativista. Para explicar el proceso de transferencia de energía en este régimen, se puede hacer uso de una aproximación simple pero útil, que considera

que los procesos de interacción entre los átomos del material se pueden tratar como colisiones binarias y que el material es amorfo, es decir, con los átomos localizados de forma aleatoria [8]. Bajo estas condiciones, se considera un ion de carga Z y masa M_1 que incide con una energía cinética E_0 sobre un átomo en reposo y de masa M_2 , como se muestra en la Figura 1.3, donde las energías se miden en el sistema de laboratorio.

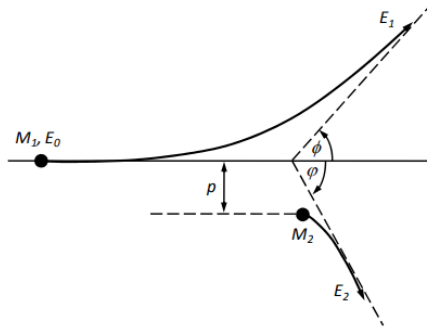


Figura 1.3. Representación esquemática de una colisión atómica clásica de dos cuerpos, respecto al sistema de laboratorio, extraída de la referencia [9].

La sección eficaz para la transferencia de la energía cinética, T , al átomo objetivo se describe a menudo según la ley de Rutherford:

$$\sigma(T) = \frac{\pi b^2}{4} T_M \frac{1}{T^2} \quad (1.6)$$

donde b es la distancia de acercamiento máximo en un choque frontal y T_M es la máxima energía transferida [10], que viene expresada por:

$$T_M = \frac{4E_0M}{(M_1 + M_2)^2} \quad (1.7)$$

De hecho, la ley de Rutherford solo es válida para valores suficientemente altos de la energía del ion incidente. Para bajas energías, se aplica un potencial de Coulomb apantallado y la fórmula debe ser corregida. En el límite de energías muy bajas, se debe usar un potencial de esfera sólida que lleva a una sección eficaz independiente de la energía.

Si la energía transferida, T , supera un determinado valor de energía de desplazamiento, E_d , el átomo golpeado se desplaza de su posición de equilibrio creando una vacante y un intersticial, lo que se denomina par de Frenkel. Este es el primer efecto del daño nuclear sobre el material. En la aproximación de Rutherford, la sección eficaz de desplazamiento viene dada por la ecuación (1.8):

$$\sigma_d = \int_{E_0}^E \sigma(T) dT = \frac{\pi b^2 T_M}{4 E_d} \quad (1.8)$$

que es directamente proporcional a la energía del ion incidente. Para calcular la concentración total de defectos producida por el ion, hay que tener en cuenta los desplazamientos secundarios generados por cada átomo primario desplazado. El número de desplazamientos secundarios, ν , es igual a 1 para $T > E_D$ [2], mientras que si $T \gg E_D$ viene dado por:

$$\nu = \frac{1}{2} \frac{T}{E_D} \quad (1.9)$$

Por tanto, para $E \gg E_D$, se puede obtener una expresión aproximada del número medio de desplazamientos secundarios por átomo primario desplazado:

$$\bar{\nu}(T) = \frac{1}{\sigma_D} \int_0^{T(\max)} \sigma(T) \nu(T) dT = \frac{1}{2} \frac{\bar{T}}{E_D} = \frac{1}{2} \ln \frac{T_{max}}{E_D} \quad (1.10)$$

Teniendo en cuenta el corto alcance de los átomos desplazados de la red cristalina, se formará una región altamente desordenada (llamada pico de desplazamientos, o *displacement spike*). Estos desplazamientos atómicos se encuentran relacionados con las colisiones elásticas nucleares y por tanto, con S_n [11].

1.2.2. Daño generado a través de la excitación electrónica

Hasta ahora, hemos tratado los defectos generados por los iones en el denominado regimen de colisiones, al final de la trayectoria del ion, pero también hay que considerar lo que pasa en el material a lo largo de dicha trayectoria. Los tipos de defectos generados por el paso de un ion pesado de alta energía dependen principalmente de la estructura electrónica del material. De esta

manera, las interacciones electrónicas generan defectos estructurales en materiales aislantes y semiconductores, mientras que en el caso de los metales la energía depositada se disipa a través de energía térmica, sin producir defectos estructurales en el material.

Los defectos producidos en este caso se generan como consecuencia de múltiples colisiones electrónicas y están gobernados principalmente por el poder de frenado electrónico, S_e . Por tanto, es común referirse a este tipo de daño generado en el material como daño electrónico, para diferenciarlo del daño generado por colisiones elásticas nucleares, o daño nuclear, tratado anteriormente. El daño electrónico es el que usará a lo largo de esta tesis como medio para generar guías de onda ópticas en LiTaO_3 .

En general, se pueden distinguir dos regímenes de daño, de tipo electrónico, inducido en el material. En irradiaciones con iones de masa intermedia, como es el caso del flúor, en los que el poder de frenado electrónico ya es suficiente para generar daños en el material, se crean defectos con carácter acumulativo, pudiendo resultar en daños estructurales según la concentración alcanzada de dichos defectos. De esta manera, se pueden generar estructuras como las guías de onda ópticas a través del daño electrónico inducido por los iones, como se detallará en el apartado 3.2. Por otro lado, en las irradiaciones que hacen uso de iones más pesados, en las que el poder de frenado electrónico se encuentra por encima del denominado umbral de amorfización, $S_{e,th}$ (que es característico de cada material), cada ion genera una traza amorfa de tamaño nanométrico a su paso por el material, cuyo diámetro es proporcional a la deposición de energía y que, a igualdad de poder de frenado, varía según la velocidad del ion. De esta forma, iones con velocidades mayores generan menor daño en el material (también denominado efecto velocidad). En la Figura 1.4, extraída de la referencia [12] se puede observar una imagen de microscopio electrónico de transmisión (TEM) de varias trazas amorfas generadas en LiNbO_3 en la irradiación con iones de Br a 35 MeV.

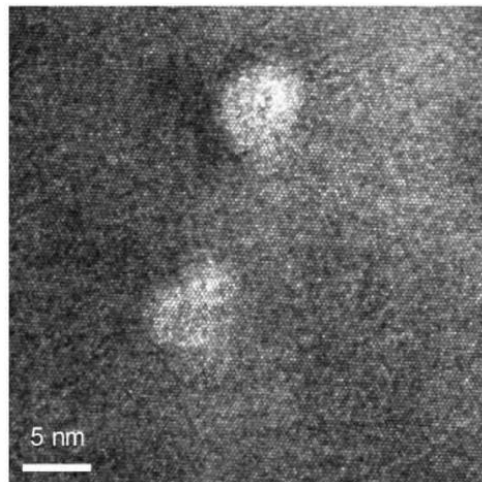


Figura 1.4. Imagen TEM de alta resolución de una muestra de LiNbO_3 irradiada con iones de Br a 35 MeV, donde se pueden observar trazas amorfas de aproximadamente $2,5 \mu\text{m}$ de diámetro (extraída de la referencia [12]).

En la Figura 1.5 se representa la relación entre el tamaño de la raza generada con el poder de frenado electrónico para el LiNbO_3 , extraído de la referencia [13].

Si se extrapolan las curvas representadas para un valor de radio igual a cero, se obtiene el poder de frenado electrónico umbral, $S_{e,th}$, para que cada ion genere una traza amorfa a su paso por el material. En el caso del LiNbO_3 el poder de frenado umbral es de $\sim 5 \text{KeV/nm}$ y, aunque se estima que el umbral del LiTaO_3 sea más alto, dado que tiene una mayor temperatura de fusión, no se tienen datos experimentales sobre este material.

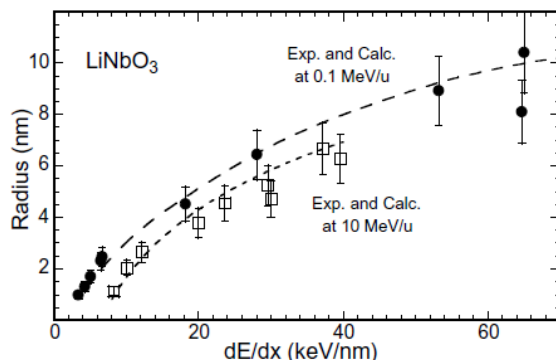


Figura 1.5. Radio de las trazas amorfas generadas por los iones en el material frente al poder de frenado electrónico. Nótese que se muestran dos regímenes de energía del ion incidente: a 0.1 MeV/uma (símbolos sólidos) y a 10 MeV/uma (símbolos huecos). Imagen extraída de la referencia [13]).

Varios autores han intentado explicar la creación de trazas en los distintos tipos de sólidos. Algunos de los modelos más extendidos, como el de pico térmico o el modelo excitónico, se describirán brevemente en la siguiente sección.

1.3. Modelos teóricos sobre el daño electrónico

Varios modelos se han desarrollado en los últimos años para explicar las distintas alteraciones que se producen en el material como consecuencia del proceso de frenado de los iones debido a interacciones electrónicas. A continuación, se hará una breve descripción de estos modelos.

1.3.1. Modelo de pico térmico (*thermal spike*)

El modelo de pico térmico, o *thermal spike*, es probablemente el más utilizado de los aquí presentados, y además ha sido extendido, modificado y mejorado desde que se presentara [14]. Este modelo se basa en considerar que la amorfización del material se produce por la fusión y por el rápido enfriamiento posterior del mismo.

Según este modelo, la energía cinética que pierden los iones al atravesar el material se deposita en los electrones del mismo, generando así una fuerte excitación electrónica colectiva. Este proceso ocurre en una escala de tiempo del orden de los 10^{-16} s. A continuación, estos electrones se termalizan, mediante la interacción con otros electrones, en un tiempo característico del orden de 10^{-15} s. Finalmente, transfieren su energía a los átomos de la red a través del acoplo electrón-fonón, alcanzándose el equilibrio en el tiempo característico de las vibraciones de la red, que típicamente es del orden de 10^{-12} s. De esta manera, se asume que, a lo largo del camino de los iones en el material, se genera una región cilíndrica de alta temperatura que incluso puede superar las temperaturas de fusión y vaporización del material. Debido al pequeño volumen de dicha región, el enfriamiento ocurre en aproximadamente 10^{-11} s, produciéndose la solidificación del material y generándose así una traza amorfa a partir de la región cilíndrica de material fundido.

Para describir este proceso, el modelo asume que los electrones y los átomos de la red son dos subsistemas independientes pero acoplados, y que cumplen, respectivamente, las siguientes ecuaciones de calor:

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right] - g(T_e - T_a) + A(r, t) \quad (1.11)$$

$$C_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r K_a(T_a) \frac{\partial T_a}{\partial r} \right] + g(T_e - T_a) \quad (1.12)$$

donde C , K y T son, respectivamente, el calor específico, la conductividad térmica y la temperatura asociados al subsistema electrónico (subíndice e) y al subsistema de los átomos de la red (subíndice a). El término de intercambio de energía es $g(T_e - T_a)$, donde g es la constante de acoplo electrón-fonón. $A(r, t)$ describe la distribución espacio-temporal de la energía del ion depositada en el subsistema electrónico:

$$A(r, t) = b S_e e^{\frac{-(t-t_0)^2}{2s^2}} F(r) \quad (1.13)$$

donde $F(r)$ es una distribución radial de la energía depositada en el subsistema electrónico, extraída de la referencia [15], b es una constante de normalización, t_0

es el tiempo de vuelo medio de los electrones excitados (del orden de 10^{-15} s), y s la anchura media de la distribución gaussiana, que se asume igual a t_0 [16].

Los parámetros termodinámicos de la red que se utilizan son aquellos medidos en condiciones de equilibrio, que son conocidos y se extraen de la literatura existente [17]. Sin embargo, los parámetros asociados al subsistema electrónico no son tan evidentes, dado que en un aislante no existen electrones libres son, en principio, desconocidos. A pesar de ello, se puede considerar válida la hipótesis realizada por Baranov et al. [18] que supone que los electrones excitados tras el paso del ion, los cuales se encuentran en la banda de conducción, se comportan como los electrones libres en un material. Por tanto, las expresiones resultantes del modelo de gas de electrones libres son válidas para las constantes termodinámicas del subsistema electrónico [19]:

$$C_e = \frac{3}{2} N_e k_B \approx 1 \text{ J/cm}^3 \text{ K} \quad (1.14)$$

$$K_e = C_e D_e = C_e \frac{1}{3} v_f l \approx 2 \text{ J/cm} \cdot \text{s} \cdot \text{K} \quad (1.15)$$

donde k_b es la constante de Boltzmann, $N_e \sim 5 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ la densidad de electrones excitados, $v_f \sim 10^8 \text{ cm/s}$ la velocidad de Fermi y l el recorrido libre medio relativo a la interacción electrón-electrón.

La constante de acoplo electrón-fonón, g , no se conoce en el caso de los materiales aislantes. En cualquier caso, dicha constante está relacionada con el tiempo medio de interacción electrón-fonón, τ_a , y con el recorrido libre medio de dicha interacción [13]:

$$\lambda^2 = D_e \tau_a = \frac{D_e C_e}{g} = \frac{K_e}{g} \quad (1.16)$$

Como g es desconocido se asume que es independiente de la temperatura y λ será el único parámetro a ajustar.

Además, estudios en diferentes óxidos han demostrado la relación entre el parámetro λ y el inverso de la energía de la banda prohibida (gap), que en LiTaO_3

se estima que es de 4,9 eV [20]. Este comportamiento es razonable si consideramos que los electrones excitados transfieren su energía a los electrones de la banda de valencia, promocionándolos a la banda de conducción.

Cabe destacar que, dado que todos los términos de la ecuación (1.12) son dependientes de la temperatura y que se produce un cambio de fase de sólido a líquido en el material, solo puede resolverse numéricamente. Sin embargo, la ecuación (1.11) puede resolverse de manera analítica puesto que se consideran los valores medios de los parámetros termodinámicos, (1.14), (1.15) y (1.16), en un amplio rango de temperaturas electrónicas. Esta aproximación es válida dado que el tiempo de interacción electrón-electrón es al menos un orden de magnitud menor que el tiempo de interacción electrón-fonón [21].

La solución de las ecuaciones (1.11) y (1.12) [19] nos proporciona el perfil de temperatura alrededor del punto de paso del ion. Como se mencionaba anteriormente, debido al pequeño volumen en el que se deposita la energía, la tasa de enfriamiento puede alcanzar 10^{14} K/s, con lo que el material fundido llega a enfriarse tan rápidamente que empieza a solidificarse en 10^{-11} s, lo que produce, según este modelo, la amorfización del material. Por tanto, podemos definir el radio de la traza amorfa generada como un cilindro cuyo eje coincide con la trayectoria del ion y donde la temperatura alcanzada es igual o superior a la temperatura de fusión del material.

Cabe destacar que este modelo cuenta con algunas debilidades que se describen a continuación. Por un lado, la frontera entre la zona amorfa y la cristalina no es abrupta como aquí se supone, sino que se genera una zona dañada intermedia que no llega a tener las características del material amorfo. La existencia de esta región intermedia, conocida como "halo" de la traza, se ha demostrado experimentalmente mediante microscopía electrónica [22]. Otro problema es que este modelo asume que por debajo del umbral de poder de frenado electrónico, por el que se produce la fusión del material, no se produce ningún daño, cuando numerosos experimentos han demostrado lo contrario [22–24]. Concretamente, en LN se ha demostrado experimentalmente, tal y como se ha investigado en el seno de nuestro grupo de trabajo [25], el carácter acumulativo del daño. De esta manera, los defectos creados en irradiaciones por debajo del umbral de amorfización del material son aditivos, pudiéndose alcanzar de esta forma la amorfización total del material. Una versión mejorada del modelo de pico térmico, teniendo en cuenta el comportamiento descrito, se ha propuesto recientemente y

se describirá en el siguiente apartado [26,27]. Otro punto controvertido de este modelo es el hecho de que la temperatura del subsistema electrónico se defina en una situación claramente fuera del equilibrio, con los electrones excitados tras el paso del ion y cuando todavía no han sido termalizados con la red, lo cual solo ocurre pasados 10^{-12} s. Sin embargo, algunos defensores del modelo manifiestan que el concepto de temperatura no debe entenderse como tal, sino como una medida de la energía depositada. En cuanto al denominado efecto velocidad, mencionado anteriormente, este modelo sí lo tiene en consideración a través de la distribución de Waligorski [15], que describe la distribución de energía inicial depositada por el ion en el subsistema electrónico, donde aparece la velocidad del ion de forma explícita.

Otra variante del modelo de pico térmico es la desarrollada por G. Szenes [28,29], que asume que, a partir del instante en el que la temperatura de la red es máxima (lo cual ocurre aproximadamente a los 10^{-12} s tras el paso del ion), el incremento de temperatura puede aproximarse a una gaussiana de la forma:

$$\Delta T(r, t) = \frac{gS_e - L\rho\pi R^2}{\rho c\pi a^2(t)} e^{\frac{-r^2}{a^2(t)}} \quad (1.17)$$

Este modelo proporciona una relación analítica entre el radio efectivo de la traza, R_e , y el poder de frenado electrónico de los iones proyectil [30,31], a través de dos simples ecuaciones: una que describe la evolución de la traza y otra que representa la condición para la fusión del material. De esta manera, para poderes de frenado electrónicos bajos existe un umbral por debajo del cual no se predice la amorfización. La aproximación usada en el modelo de Szenes es la que se usa en el modelo posterior desarrollado en nuestro grupo de trabajo, que se describirá a continuación.

1.3.2. Modelo extendido de pico térmico

Este modelo se ha desarrollado en el seno del grupo de trabajo por el Prof. Fernando Agulló y los Dres. Gastón García y José Olivares [32], y será en el que se basa el trabajo aquí presentado. Con él, se intenta dar explicación a algunos aspectos relevantes sobre el daño generado por los iones a través de las interacciones electrónicas que no se describen en los modelos discutidos previamente, como el carácter acumulativo del daño electrónico o la dependencia con la fluencia del poder de frenado electrónico umbral para que se produzca la

amorfización, siendo este un comportamiento que se ha puesto de manifiesto en distintos trabajos [33–37].

El modelo que aquí se propone se basa en el modelo de pico térmico, descrito anteriormente, en la aproximación hecha por Szenes [28,29], que tiene como ventaja no ser necesario una formulación detallada de cómo los electrones ceden su energía a otros electrones y a la red. Además, se puede extender fácilmente a fin de tener en cuenta los estados de pre-amorfización. Sólo es necesario suponer que el ion transfiere una determinada cantidad de energía, S_e , por unidad de longitud al subsistema electrónico, y esta energía se transfiere posteriormente a la red con un cierto factor de eficiencia, g , que es independiente de S_e y menor que 1.

La energía transferida genera una distribución de temperatura $\Delta T = \Delta T(r, t, S_e)$. Para $t=0$, cuando los electrones excitados tras el paso del ion han cedido su energía a los átomos de la red, se supone una distribución gaussiana de temperaturas:

$$\Delta T(r, 0, S_e) = \frac{\eta S_e}{\rho C \pi a_0^2} e^{-r^2/a_0^2} \quad (1.18)$$

donde a_0 es la anchura de la distribución gaussiana inicial, ρ la densidad del cristal, C el calor específico y $\Delta T = T - T_s$ siendo la temperatura del sustrato.

Se puede calcular entonces la evolución del perfil de temperaturas, asumiendo que la transmisión de calor por radiación es despreciable, considerando por tanto solo la conducción en la dirección perpendicular al recorrido del ion, además de suponer que ni los parámetros mecánicos ni los térmicos dependen de la temperatura. Con ello, es fácil obtener la máxima temperatura alcanzada para cada r (1.19) y (1.20) y, recíprocamente, el radio para el que se llega a la temperatura de fusión del material (1.21) y (1.22).

$$\Delta T_{max}(r, S_e) = \frac{\eta S_e}{\rho C \pi a_0^2} e^{-r^2/a_0^2} \quad 0 < r < a_0 \quad (1.19)$$

$$\Delta T_{max}(r, S_e) = \frac{\eta S_e}{\pi e \rho C} \frac{1}{r^2} \quad r > a_0 \quad (1.20)$$

$$R_a^2 = r^2(T_f) = a_0^2 \log \frac{S_e}{S_f} \quad 0 \leq R_a^2 \leq a_0^2 \quad (1.21)$$

$$R_a^2 = r^2(T_f) = \frac{a_0^2}{e} \frac{S_e}{S_f} \quad R_a^2 \geq a_0^2 \quad (1.22)$$

El radio de la traza se define como el radio de un cilindro cuyo eje coincide con la trayectoria del ion y donde la temperatura máxima que alcanza la red es igual o mayor que la temperatura de fusión del material. Por tanto, del perfil de temperatura es inmediata la obtención del radio de la traza, esto es, el radio de amorfización, que queda descrito por las ecuaciones (1.21) y (1.22).

Todas estas cuestiones se consideran en el modelo de Szenes. La aportación del nuevo modelo consiste en considerar además que, aunque no se alcance la temperatura de fusión del material, la irradiación genera defectos que produce a su vez una cantidad de desorden en la red del material que puede ser suficiente para generar lo que se denomina una región preamorfizada. Además, la acumulación de este tipo de defectos intrínsecos puede desembocar en la amorfización completa del material, aun estando por debajo del valor umbral del poder de frenado electrónico para el cual se produce la amorfización, $S_{e,u}$, que se define matemáticamente como el valor que genera una traza de radio cero.

El modelo asume que la concentración de defectos intrínsecos generados por el ion y responsables del daño estructural viene dado por la ley de Arrhenius:

$$c(T) = A \cdot e^{-\varepsilon/KT} \quad (1.23)$$

Dado que la dependencia de Arrhenius se define para procesos en equilibrio térmico y, en este caso, claramente estamos fuera de él, se debe considerar esta expresión como la probabilidad de que un átomo con energía cinética promedio $3/2KT$ supere cierta barrera de energía, ε , para generar un defecto. Cabe notar que no es fácil decidir el tipo de defectos inducidos térmicamente y responsables del desorden y la eventual fusión del material, por lo que ε debe considerarse como un parámetro ajustable. Por otro lado, es necesario establecer un valor umbral de concentración de defectos, c_a , por encima del cual se alcance la fase amorfa, que determinará el radio de la traza, y el valor de la concentración umbral correspondiente a la formación de la región preamorfa, c_{pa} , que definirá el halo de la traza que rodea al núcleo amorfo, según el esquema representado en la Figura 1.6 y extraído de la referencia [38].

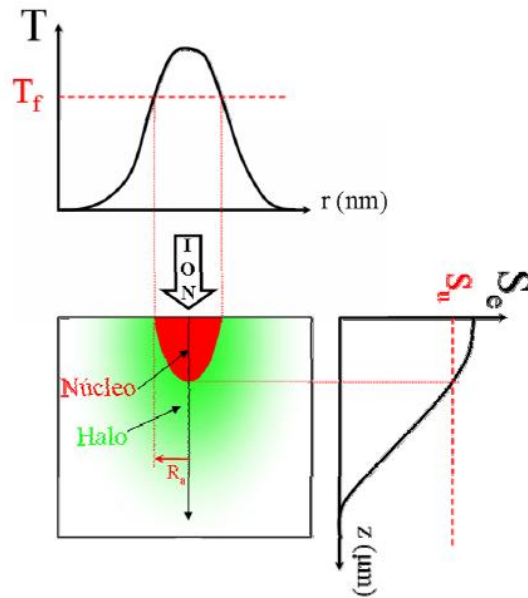


Figura 1.6. Esquema de una traza amorfa de radio R_a , con el núcleo y el halo indicados, y la correspondiente curva de poder de frenado electrónico, S_e , en función de la profundidad, con el umbral de amorfización, S_u , indicado. También se muestra el perfil de temperaturas máximas alcanzadas por la red cristalina en la superficie de la muestra tras el paso del ion, con la temperatura de fusión del material, T_f , señalada. Imagen extraída de la referencia [38].

En muchos cristales, la concentración de defectos que produce la fusión del material se ha comprobado experimentalmente [39], que está en torno a 10^{-3} (normalizada a la concentración atómica). Con respecto a la región preamorfa, podemos suponer que tendrá una concentración de defectos tal que $c_{pa}/c_a > 10^{-3}$, donde c representa la concentración típica de defectos de fondo en cualquier material. Teniendo en cuenta estas suposiciones, se puede obtener la temperatura crítica de formación del halo, y el radio del halo de las trazas, R_{pa} , siguiendo el mismo procedimiento que usa Szenes en su método.

El otro punto novedoso de este modelo es que propone una explicación al hecho de que el valor umbral del poder de frenado por encima del cual se produce la amorfización disminuye con la fluencia, comportamiento que refleja el carácter

acumulativo del daño electrónico y que se ha puesto de manifiesto en diversos experimentos [33,34,37]. El modelo propone que la irradiación induce daño electrónico incluso cuando nos encontramos por debajo del umbral de amorfización, generando así las regiones preamorfizadas, como se ha descrito anteriormente, estas regiones juegan un papel fundamental debido al "efecto memoria", ampliamente aceptado para el caso del daño nuclear. Debido al carácter acumulativo del daño y teniendo en cuenta los defectos generados por debajo del umbral, c_a , estos se irían sumando, modificando el material y, por consiguiente, el valor umbral para la generación de defectos de la sucesiva irradiación.

Finalmente, merece la pena destacar que este modelo solo considera concentraciones medias de defectos en función de la profundidad en la muestra y, por tanto, no tiene en cuenta las fluctuaciones estadísticas, especialmente importantes para fluencias de irradiación bajas. Por ello, se ha desarrollado una simulación Monte Carlo basada en las mismas fórmulas aplicadas en el modelo analítico descrito [27]. Esta herramienta permite calcular el número de defectos creados por cada ion y el grado de amorfización en función de la profundidad, lo que permite describir la cinética de amorfización del material en función de la fluencia, sin llegar a la amorfización completa. Una explicación detallada de dicha aproximación puede encontrarse en [27].

1.3.3. *Modelo excitónico*

El modelo excitónico [40,41] considera que cuando un ion atraviesa un material aislante y deposita su energía en los electrones del material, además de transferirse dicha energía directamente a la red, se generan pares electrón-hueco que, posteriormente, se ligan para formar excitones. El número de pares electrón-hueco que se crea en este proceso se estima que es E/I , donde E es la energía que el ion deposita en los electrones del material e I es dos o tres veces la energía de la banda prohibida [41]. Los excitones permanecen homogéneamente localizados, o autoatrapados, hasta que decaen liberando su energía. Dicho decaimiento puede producirse de dos maneras: radiativa, mediante la emisión de un fotón, o no radiativa, proceso que involucra un reordenamiento local de los enlaces y produce una distorsión de la red [42]. En este último caso, la relajación de los excitones produce fuertes desplazamientos en los átomos de la red, lo que puede conducir a la formación de defectos en el material y, eventualmente, producir su amorfización.

Recientemente, se ha propuesto una variante del modelo excitónico que combina este modelo con el del pico térmico, que se explicará a continuación [43]. Este nuevo modelo supone que la combinación entre ambos procesos es fundamental para explicar la superlinealidad en la creación de defectos observada experimentalmente. Para ello, se asume un diagrama de niveles de energía de los iones, como el de la Figura 1.7, donde se representan las curvas de energía potencial adiabática para los estados electrónicos fundamental y excitado en función de la coordenada configuracional de los iones.

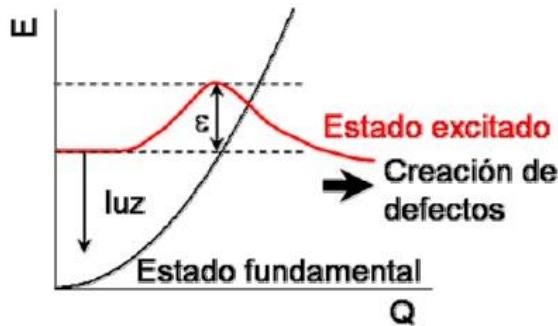


Figura 1.7. Esquema del diagrama de niveles de energía para un excitón autoatrapado, en función de la coordenada configuracional, donde se muestran el estado excitado (línea roja) y el fundamental (línea negra), extraído de la (de la referencia [38]).

El estado excitado conduce al desplazamiento atómico si se supera un cierto umbral de energía, ε . Esta energía se consigue por tanto a través de las altas temperaturas alcanzadas en la trayectoria del ion, que supone el punto de enlace con el modelo de pico térmico. El decaimiento no radiativo de la concentración de excitones N_x , gobernado por la temperatura alcanzada en el pico térmico, se expresa según:

$$\frac{dN_x}{dt} = -N_x \left(v_0 e^{-\varepsilon/kT} + \frac{1}{\tau_R} \right) \quad (1.24)$$

donde v_0 es un factor de frecuencia, ε es la energía umbral para la creación de defectos y τ_R es el tiempo de vida medio del decaimiento radiativo. El primer término, que proporciona la tasa de creación de defectos, ya incorpora la

dependencia con el poder de frenado electrónico, ya que T depende de S_e según las expresiones deducidas en el modelo del pico térmico que se verán a continuación. Este modelo supone además la existencia de un valor crítico en la concentración de defectos, por encima de la cual se produciría el colapso de la red conduciendo a la amorfización del material.

1.4. Simulación del daño inducido en la irradiación con iones de alta energía

Actualmente existen diversos códigos para el cálculo tanto del poder de frenado de los iones como la cantidad de átomos desplazados a lo largo de su trayectoria en el material [44]. El código más ampliamente utilizado es el código SRIM, de sus siglas en inglés *Stopping and Range of Ions in Matter* [45], que usa la aproximación de colisiones binarias con un método de simulación Monte Carlo, en la que el parámetro de impacto de la colisión subsecuente se elige de forma aleatoria. El código SRIM permite calcular distintas magnitudes, como la concentración de vacantes, la deposición de energía (correspondiente a las pérdidas de energía por procesos tanto nucleares como electrónicos) o la distribución de los iones en el material. Por otro lado, este código también tiene sus limitaciones en los cálculos, ya que se basa en potenciales que no consideran las características termodinámicas del sistema.

De manera más reciente, los métodos de simulación de dinámica molecular (DM [46,47] se han desarrollado con el fin de tratar el daño generado por los iones en un material de forma más rigurosa, en la que la evolución del sistema se calcula a partir de los potenciales interatómicos, obtenidos normalmente de cálculos *ab initio*. De esta manera, no se tienen las limitaciones de la aproximación de colisiones binarias y se puede, por tanto, estudiar fenómenos como los defectos producidos debido a colisiones elásticas, tratamientos térmicos o estrés en el material. Por otro lado, los requerimientos de computación de las simulaciones de DM restringen su uso en procesos de larga extensión temporal.

A lo largo de este trabajo se ha utilizado el código SRIM para la simulación de las irradiaciones llevadas a cabo con el fin de calcular las curvas de poder de frenado electrónico y nuclear en LiTaO_3 .

Capítulo 2. Tantalato de litio - LiTaO_3

El tantalato de litio, LiTaO_3 (LT), es un material que, junto al LiNbO_3 (LN), es de los más importantes en la óptica integrada. Debido a que tiene una mayor región de transparencia y mayor resistencia al daño óptico, resulta más atractivo que el LN para algunas aplicaciones. Sin embargo, debido a la facilidad de obtener sustratos más grandes y económicos, además de varias técnicas bien consolidadas de fabricación de guías de onda, el LN se ha convertido en el material usado de manera más extendida. Recientemente, ha resurgido el interés en LT ya que, además de contar con nuevas técnicas de síntesis del material, se pueden generar inversión de dominios ferroeléctricos fácilmente y de menor tamaño que en el caso del LN, dando lugar a nuevas posibles aplicaciones. A continuación, se describen algunas de las propiedades que convierten al LT en un material tan interesante.

2.1. Estructura cristalina y propiedades

El tantalato de litio es un sólido cristalino a temperatura ambiente, muy parecido al muy estudiado LN. En la Tabla 2.1 se detallan algunas de sus principales propiedades [48–51], las cuales varían en función de la composición del material, además de la comparación con el LN.

Se trata de un material ferroeléctrico por debajo de su temperatura de Curie. La ferroelectricidad consiste en la aparición de un momento dipolar intrínseco, denominado polarización espontánea, en ausencia de campo eléctrico.

	LiTaO_3	LiNbO_3
$T_{\text{fusión}} (^{\circ}\text{C})$	1650 (48)	1255
$T_{\text{Curie}} (^{\circ}\text{C})$	604-690 (49)	1140
ρ (g/cm^3)	7.45 (48)	4.65
C ($\text{J}/\text{g}\cdot\text{K}$)	0.426 (48)	0.625
Borde de absorción (nm)	275-256 (50,51)	330-315

Tabla 2.1. Comparación de algunas de las principales propiedades de LiTaO_3 , extraídas de las referencias indicadas en cada caso, y de LiNbO_3 , extraídas de la de la referencia [38]).

La estructura que presenta el cristal es ligeramente diferente en las fases ferroeléctrica y paraeléctrica. El LT pertenece al sistema cristalográfico trigonal, cuya estructura es similar a la denominada *perovskita*, y consiste en octaedros ligeramente deformados, formados por los planos de oxígeno, como se muestra en la Figura 2.1(a) [52,53]. El eje perpendicular a los planos formados por los átomos de oxígeno es el denominado *eje c*. Los intersticios entre los octaedros están ocupados por átomos de Li, átomos de Ta y vacantes, alternativamente. Esta secuencia ordenada es la responsable de la polarización espontánea que presenta el material. Cuando se supera la temperatura de Curie, que está entre 600 y 700°, dependiendo de la composición del cristal, los átomos de Li y Ta, que se encontraban ligeramente desplazados, se mueven hacia la posición de equilibrio, cancelándose por tanto la polarización espontánea que se tenía (Fig. 2.1b).

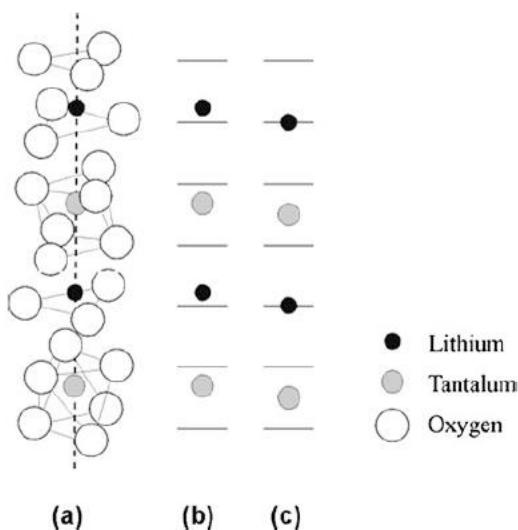


Figura 2.1. Vista en tres dimensiones de la estructura del LiTaO_3 en su fase ferroeléctrica (a). Proyección de las posiciones de los átomos de Li y Ta respecto al plano perpendicular a los octaedros de oxígeno (en línea sólida) en la fase ferroeléctrica (b) y paraeléctrica (c), extraídas de la referencia [52].

La estructura cristalina se pondrá de manifiesto en los experimentos de RBS-c realizados en este trabajo y cuyos principios teóricos básicos se explican en el apartado 6.1. Todas las muestras utilizadas a lo largo de esta tesis son de corte Z, esto es, con el eje c perpendicular la superficie de las muestras.

2.1.1. Crecimiento y composición

Los cristales de LT más usados a los que se tiene acceso comercialmente son cristales de composición congruente, crecidos por la técnica Czochralski [52,53]. Ésta técnica consiste en bañar una semilla de LiTaO_3 monocristalino y orientado en un fluido formado por los óxidos precursores del cristal, esto es, Ta_2O_5 y Li_2O . A partir de la semilla, en condiciones controladas de presión y temperatura, se hace crecer nuevo material sacándola del fluido y haciéndola girar, con velocidad constante tanto de giro como de extracción. El diagrama de fases del sistema Li_2O - Ta_2O_5 se muestra en la Figura 2.2 [54].

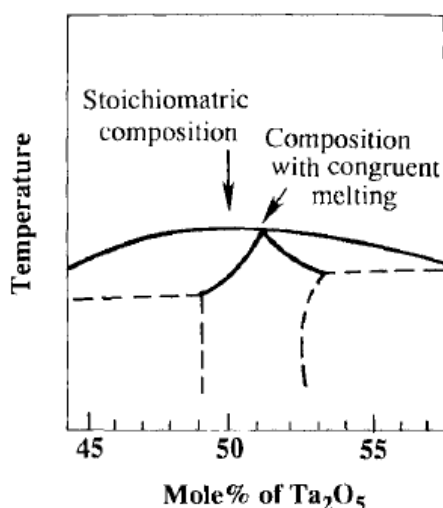


Figura 2.2. Diagrama de fases del sistema Li_2O - Ta_2O_5 , extraído de la referencia [55].

La peculiaridad de la composición congruente es que el cristal tiende naturalmente a crecer con ella, por lo que la fabricación de LT con otra composición resulta costoso y problemático. Por esta razón, el LT convencional que se comercializa es de composición congruente, el cual presenta cierta deficiencia en Li, en la que la proporción $\text{Li}_2\text{O}:\text{Ta}_2\text{O}_5$ es aproximadamente 48.5:51.5. En los cristales de composición congruente un pequeño porcentaje de sitios de Litio se sustituyen por Na (lo que se denomina como defecto de antisitio o antiestructural), mientras que los sitios de Li y Ta contienen vacantes. Estos defectos (no estequiométricos) afectan significativamente a las propiedades ópticas y ferroeléctricas del material.

Los cristales en composición estequiométrica, con una fracción molar de Li_2O de aproximadamente 49,9%, se obtienen mediante la técnica Czochralski de doble crisol, en la que la densidad de defectos se reduce considerablemente [56]. La técnica VTE (de sus siglas en inglés, Vapour Transport Equilibrium) permite también generar cristales de composición estequiométrica a partir de cristales congruentes [57,58].

2.2. Propiedades ópticas

2.2.1. *Propiedades ópticas lineales*

Bordes de absorción y reflectividad:

Los cristales de LT fabricados sin aplicar ningún campo eléctrico durante el proceso de crecimiento en estado puro y totalmente oxidados, son incoloros y transparentes. La reflectividad, debido al alto valor de los índices de refracción alcanza valores de hasta ~14%, siendo ~15% la del LN, a incidencia normal [59,51,60].

El LT resulta un material muy interesante principalmente debido a su amplia región de transparencia (0,27-6 μm), que resulta más extensa en el UV que aquella del LN. En la Figura 2.3 se muestra la comparación del coeficiente de absorción del LT y el LN, en función de la energía, extraída de la [60]:

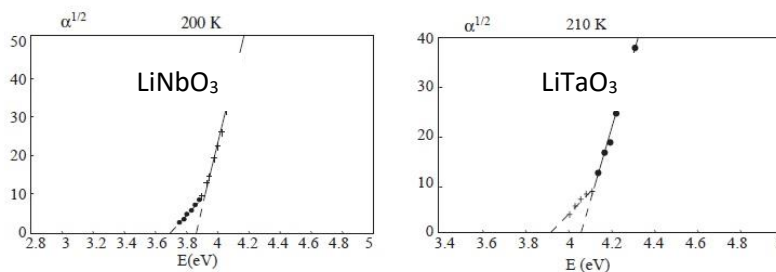


Figura 2.3. Comparación de los coeficientes de absorción del LiTaO_3 (derecha) y LiNbO_3 (izquierda) en función de la energía, extraídas de la referencia [60].

Índices de refracción:

El LT es un cristal uniaxial que posee, por tanto, dos índices de refracción principales. El índice de refracción extraordinario es el correspondiente a la propagación de la luz linealmente polarizada, con el campo eléctrico oscilando en la dirección del eje óptico, que coincide con el eje c. El índice de refracción ordinario corresponde en cambio a la propagación con el campo eléctrico oscilando en el plano perpendicular al eje óptico. Ambos índices de refracción se han medido en un amplio rango espectral, tanto para la composición congruente como la estequiométrica [61–63,46,47]. El índice de refracción ordinario del CLT y el SLT con aproximadamente iguales, mientras que el índice de refracción extraordinario es menor en SLT que en CLT. Esta relación entre el índice de refracción extraordinario y el contenido de Li es la misma que presenta el LN, en el cual el índice ordinario es también independiente de la concentración de Li. De esta manera, el cristal congruente presenta una birrefringencia positiva, ($\Delta n = 0,004$), mientras que el cristal de composición estequiométrica presenta una birrefringencia negativa, de nuevo similar que en el caso del LN.

Se puede hacer un ajuste preciso de la dependencia de los índices de refracción a través de la ecuación de Sellmeier [62]:

$$n^2 = A_1 + \frac{A_2 + B_1 F}{\lambda^2 - (A_3 + B_2 F)^2} + B_3 F + A_4 \lambda^2 \quad (2.1)$$

donde A_1 , A_2 , A_3 , A_4 , B_1 , B_2 y B_3 son constantes, λ es la longitud de onda (en μm), y F es una función que determina la dependencia con la temperatura y viene descrita por:

$$F = (T - T_0)(T + T_0 + 546) \quad (2.2)$$

donde T_0 es la temperatura ambiente y T es la temperatura, en grados centígrados. Cuando $T=T_0$, la expresión se reduce a la ecuación de Sellmeier independiente del tiempo [49]:

$$n^2 = A_1 + \frac{A_2}{(\lambda^2 - A_3^2)} + A_4 \lambda^2 \quad (2.3)$$

Las distintas constantes se resumen en la Tabla 2.2 para el LiTaO₃ de composición congruente, tanto en la polarización ordinaria como extraordinaria, y se han extraído de la [62].

	A ₁	A ₂	A ₃	A ₄
n _o	4,512 24	0.084 752 2	0.198 76	-0.02 390 46
n _e	4,529 99	0.084 431 3	0.203 44	-0.02 379 09

	B ₁	B ₂	B ₃
n _o	-9.664 49x10 ⁻⁹	8.815x10 ⁻⁸	4.256 37x10 ⁻⁸
n _e	1.729 95x10 ⁻⁷	-4.7733x10 ⁻⁷	-8.314 67x10 ⁻⁸

Tabla 2.2. Constantes de la ecuación de Sellmeier para el LiTaO₃ en composición congruente.

Según la ecuación de Sellmeier, se puede representar el índice de refracción con respecto a la longitud de onda, como se muestra en la Figura 2.4, a temperatura ambiente, tanto para la composición congruente como para la composición estequiométrica [49], para la polarización ordinaria.

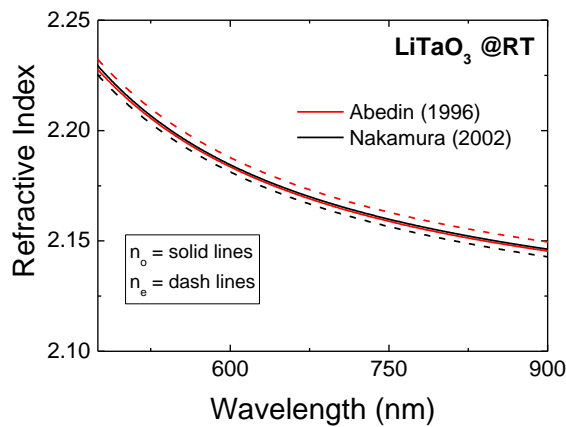


Figura 2.4. Índices de refracción en función de la longitud de onda para la composición congruente [62] y para la composición estequiométrica [49], a temperatura ambiente y polarización ordinaria.

Se puede observar que, como se comentaba anteriormente, mientras que el índice de refracción ordinario es similar para ambas composiciones del cristal, el índice

de refracción extraordinario depende significativamente de dicha composición, resultando en un cambio de birrefringencia positiva en la composición congruente, a negativa en la composición estequiométrica.

En esta tesis se utilizan cristales de LT de composición tanto estequiométrica como congruente. Los índices de refracción utilizados como referencia del cristal virgen, para la longitud de onda 633 nm, se resumen en la Tabla 2.3, obtenidos del proveedor de las muestras en cada caso:

	n_o	n_e
Estequiométrico	2,178	2,174
Congruente	2,178	2,182

Tabla 2.3. Índices de refracción ordinario, n_o , y extraordinario, n_e , del LiTaO₃ virgen de composición estequiométrica y congruente.

2.2.2. Propiedades ópticas no lineales

El vector polarización, P^5 , describe la interacción entre la luz y un determinado material. Si suponemos que la respuesta del material es instantánea, es decir, ignorando la posible dispersión, la polarización se puede expresar como un desarrollo en potencias del campo eléctrico, de la siguiente forma:

$$P_i = \varepsilon_0 \left[\sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j + \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \right] \quad (2.4)$$

El primer término de esta serie es el término lineal, y corresponde a los procesos de la óptica convencional. El segundo término, χ^2 , se refiere a los procesos no lineales de segundo orden, el tercero, χ^3 , está asociado a los procesos de tercer orden, etc.

Si consideramos el caso general en el que el campo incidente es una suma de varios campos monocromáticos de frecuencias $\omega_1, \omega_2, \dots, \omega_p$, es decir:

$$\begin{aligned}
 E_j(t) &= \sum_{\alpha=1}^p E_j(\omega_\alpha) \cos(\omega_\alpha t + \varphi_\alpha) \\
 &= \frac{1}{2} \sum_{\alpha=1}^p [\tilde{E}_j(\omega_\alpha) e^{-i\omega_\alpha t} + \tilde{E}_j^*(\omega_\alpha) e^{i\omega_\alpha t}]
 \end{aligned} \tag{2.5}$$

y sustituimos en la expresión para la polarización (2.4), aparecen diversos términos que dan cuenta de los procesos lineales y no lineales generados por el campo incidente en el material. En el caso de los procesos no lineales, cada uno de estos términos se corresponde con un término de la polarización, P , oscilando a una frecuencia ω , que es una mezcla de las frecuencias incidentes:

$$\omega = \sum_{\alpha} (\pm \omega_\alpha) \tag{2.6}$$

LT es un material no-centrosimétrico y que presenta altos χ^2 , es decir, altos coeficientes no lineales que generan una buena respuesta no lineal de segundo orden, lo cual lo convierte en un material muy interesante para distintas aplicaciones. A continuación, se describen algunos de estos procesos no lineales, particularmente aquellos en los que el LiTaO₃ presenta un mayor potencial de aplicación.

Generación de segundo armónico (SHG):

La generación de segundo armónico es el efecto por el cual se puede generar una onda cuya frecuencia es el doble de la original, y es uno de los fenómenos más relevantes de la óptica no lineal, tanto desde el punto de vista fundamental como en su aplicación.

El término del vector de polarización, P , que corresponde al fenómeno de generación de segundo armónico viene dado por:

$$\tilde{P}_i(2\omega_1) = \frac{\epsilon_0}{2} \chi_{ijk}^{(2)} \tilde{E}_j(\omega_1) \tilde{E}_k(\omega_1) \tag{2.7}$$

Normalmente, puesto que para cualquier medio el tensor χ^2 es simétrico respecto a permutaciones en los índices j y k para cualquier medio, éste se puede

reemplazar por la matriz d_{il} y, usando además la contracción de subíndices, se obtiene:

$$\tilde{P}_l(\omega_1) = \varepsilon_0 d_{il} \tilde{E}_l(\omega) \quad (2.8)$$

donde d_{il} para el LiTaO₃ (y el LiNbO₃) se puede expresar como:

$$d_{il} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{51} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{51} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.9)$$

Los valores que toman los distintos coeficientes se muestran en la Tabla 2.4 y han sido extraídos de la [64].

	d₃₁ (pm/V)	d₃₃ (pm/V)	d₂₂ (pm/V)
suhara	1,01	15,6	1,68

Tabla 2.4. Coeficientes no lineales de segundo orden (a $\lambda=1.064 \mu\text{m}$) correspondientes al LiTaO₃ de composición congruente.

Una de las condiciones esenciales para una generación eficiente de segundo armónico, además de un alto coeficiente de acoplo no lineal, es el ajuste de fases. Aunque el LT no presenta birrefringencia lo suficientemente alta para generar ajuste de fases, se puede generar SHG de manera eficiente a través del quasi-ajuste de fases. Este efecto se basa en la modulación de la polarización del material a través de la inversión de dominios ferroeléctricos [65,66,53], lo cual permite el ajuste de fases de una longitud de onda arbitraria mediante la elección apropiada del periodo de modulación.

LT resulta ser un material muy atractivo para dispositivos QPM-SHG de alta potencia [67], incluso mejor que el LN ya que, además de ser más resistente al daño fotorrefractivo como se explicará a continuación, LT permite una mejor formación de dominios ferroeléctricos, siendo estos más pequeños que en LN, llegando incluso al rango de dominios submicrométricos [68].

Efecto electroóptico (efecto Pockels):

El efecto electroóptico, o efecto Pockels, describe los cambios en el índice de refracción debido a la acción de un campo eléctrico. Además, está muy relacionado con el efecto fotorreractivo, que se describirá posteriormente.

El término del vector de polarización, P , correspondiente al efecto electroóptico viene dado por:

$$\tilde{P}_i(\omega_1) = \tilde{P}_i(\omega_1 \pm 0) = 2\varepsilon_0\chi_{ijk}^{(2)}\tilde{E}_j(\omega_1)\tilde{E}_k(0) \quad (2.10)$$

aunque es más común expresarlo en términos del cambio en el índice de refracción:

$$\Delta(1/n^2)_{ij} = \sum_k r_{ijk}E_k \quad (2.11)$$

donde r_{ijk} son los miembros del tensor:

$$r_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & -r_{22} & r_{13} \\ 0 & r_{22} & r_{13} \\ 0 & 0 & r_{33} \\ 0 & r_{51} & 0 \\ r_{51} & 0 & 0 \\ -r_{22} & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

Expresando (2.11) en función de (2.12) se obtiene:

$$\Delta(1/n^2)_l = \sum_k r_{lk}E_k \quad (2.13)$$

Los valores que toman los distintos coeficientes se muestran en la Tabla 2.5 y han sido extraídos de la [69].

$r_{33}(\text{pm/V})$	$r_{13}(\text{pm/V})$	$r_{22}(\text{pm/V})$	$r_{51}(\text{pm/V})$
30,3	7	1	20

Tabla 2.5. Coeficientes electroópticos para el LiTaO_3 de composición congruente.

El LiTaO_3 es un material muy interesante para dispositivos que hacen uso del efecto electroóptico y, debido a sus altos coeficientes, es uno de los materiales más usados.

Efecto fotorrefractivo (daño óptico):

El efecto fotorrefractivo, descubierto por Ashkin en LiNbO_3 y LiTaO_3 [70,71], es el fenómeno por el cual se produce una variación del índice de refracción al iluminar el material con una distribución de intensidad no uniforme. La teoría [72] supone que son las impurezas donoras y aceptoras de electrones del material las responsables de este fenómeno.

El carácter no local del efecto fotorrefractivo ofrece la posibilidad de grabar patrones semipermanentes de índice de refracción bajo luz inhomogénea, que pueden posteriormente ser borrados con luz homogénea sin alterar la estructura del material. Sin embargo, este efecto puede resultar molesto para determinadas aplicaciones, por lo que se suele denominar daño óptico a la distorsión del haz de luz generada por el efecto fotorrefractivo.

El problema del daño fotorrefractivo en los dispositivos de SHG en LN motiva la realización de dispositivos QPM-SHG en LT, puesto que este último tiene un umbral de daño fotorrefractivo de hasta un orden de magnitud, en el rango del visible, que el LN [73,74].

2.3. Otras propiedades

Efecto piezoeléctrico:

El efecto piezoeléctrico consiste en la aparición de un campo eléctrico en un material inducido por una deformación en el mismo. De la misma manera, si se aplica un campo eléctrico a un material, éste reacciona deformándose. La polarización inducida en un material por el efecto piezoeléctrico se puede describir a través de la expresión:

$$P_i = d_{ijk} \sigma_{jk} \quad (2.14)$$

donde d_{ijk} es el tensor piezoléctrico de tercer orden y σ_{jk} es el tensor de estrés del material.

De manera análoga, para el efecto piezoeléctrico inverso, la tensión inducida en el material se puede escribir en función del campo eléctrico aplicado, E_i , como:

$$\varepsilon_{jk} = d_{ijk} E_i \quad (2.15)$$

Los coeficientes del tensor piezoléctrico para el LT se pueden consultar en la [75].

La respuesta piezoeléctrica del tantalato de litio ha sido aprovechada para multitud de aplicaciones, de la cuales se hablará en el apartado 3.3.

Efecto piroeléctrico:

El efecto piroeléctrico consiste en la aparición de un campo eléctrico inducido por una variación en la temperatura del material. La magnitud por la que se cuantifica este efecto es el coeficiente piroeléctrico [55]:

$$p_3 = \frac{\partial P_s}{\partial T} = 2.3 \cdot 10^{-8} \text{ C} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{K}^{-1} \quad (2.16)$$

que depende además de la composición del material.

Cabe destacar que hay que tener especial cuidado con este efecto ya que si el material experimenta cambios de temperatura muy bruscos, se pueden producir roturas en el cristal que compliquen su posterior aplicación. Este es un fenómeno a tener en cuenta tanto en el procesamiento como en el posterior análisis de las guías de onda ópticas presentadas en esta tesis.

Capítulo 3. Guías de onda ópticas en LiTaO₃

Las guías de onda ópticas fabricadas en cristales no lineales como el LiTaO₃ (LT) son el componente fundamental para la implementación de dispositivos de óptica no lineal compactos y eficientes. A continuación, se hará una breve descripción teórica de las guías de onda ópticas a través del modelo de rayos y el modelo electromagnético, centrando la atención en las guías de onda planares, que son las usadas a lo largo de este trabajo. Seguidamente, se expondrán algunas de las técnicas de fabricación de guías de onda ópticas más usadas, destacando la irradiación con haces de iones pesados a altas energías, en la que se basa esta tesis. Por último, se mencionarán algunas de las aplicaciones de las guías de onda ópticas en LT y su importancia en diversos campos.

3.1. Guías de onda ópticas: descripción teórica

Las guías de onda ópticas son estructuras que permiten la propagación de la luz de manera confinada en un volumen del orden de la longitud de onda de la luz ($\lambda \sim 1\mu\text{m}$) [76,64]. Por ello, el campo eléctrico de la guía solo puede existir para un número discreto de vectores de onda, denominados modos de propagación, que son pocos, bien diferenciados y accesibles a la medida física y a su utilización práctica. De esta forma, las guías de onda son un componente esencial en los circuitos ópticos y optoelectrónicos, así como en los dispositivos de óptica integrada.

El fenómeno físico en el que se basan las guías de onda ópticas es la reflexión total interna. La condición principal que se debe cumplir para que se produzca dicha reflexión es que el índice de refracción de los medios circundantes sea menor que el de la propia guía de onda. La descripción teórica que se hará a continuación se centrará en las guías de onda planares, ya que así son las estudiadas a lo largo de este trabajo.

La electrodinámica clásica de Maxwell describe de manera rigurosa la propagación de la luz en una guía de onda. Sin embargo, desde el punto de vista de la óptica geométrica, el modelo basado en rayos ópticos supone una aproximación más sencilla e intuitiva a este tema, por lo que será utilizado en primera instancia.

- Modelo de Rayos:

Consideremos como primera aproximación una guía de onda formada por una región de índice de refracción constante n_g , y separada del sustrato y del recubrimiento (con índices n_s y n_r , respectivamente) por una frontera abrupta y bien definida. En la Figura 3.1 se observa un esquema de este tipo de guía.

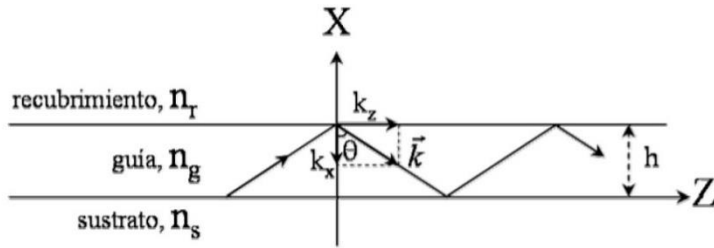


Figura 3.1. Esquema de una guía de onda planar, extraído de la referencia [38].

Como ya se ha mencionado, la primera condición que se debe cumplir es que $n_g > n_r, n_s$. De esta forma, el ángulo crítico a partir del cual se produce la reflexión total interna en las intercaras recubrimiento-guía y guía-sustrato se pueden obtener de la ley de Snell:

$$\sin \theta_{r,s} = \frac{n_{r,s}}{n_g} \quad (3.1)$$

Como habitualmente el recubrimiento suele ser el aire, se cumple que $n_s > n_r = 1$ y por tanto, $\theta_s > \theta_r$.

Además de la condición de reflexión total interna, existe otro requisito fundamental que es el responsable de la cuantización de los vectores de onda dentro de una guía. En un recorrido de ida y vuelta, un rayo de luz experimenta un cambio de fase transversal (en la dirección de confinamiento, X), que debe ser un múltiplo entero de 2π para que los distintos haces interfieran constructivamente y se produzca el guiado. Solo un número discreto de ángulos, correspondientes a los modos guiados, cumplen la denominada condición de resonancia transversal:

$$kn_g h \cos \theta_m + \phi_s(\theta_m) + \phi_r(\theta_m) = m\pi \quad (3.2)$$

donde $m=0,1,2...$ es el orden del modo, y θ_r y θ_s son los cambios de fase que sufre el rayo al ser reflejado en las dos intercaras. Dichos cambios de fase se pueden obtener de las expresiones (3.3) y (3.4), dependiendo de si el estado de polarización de la luz es transversal eléctrico, TE, o transversal magnético, TM.

$$\operatorname{tg} \theta_{r,s}^{TE} = -\frac{\sqrt{n_g^2 \sin^2 \theta - n_{r,s}^2}}{n_g \cos \theta} = -\sqrt{\frac{N^2 - n_{r,s}^2}{n_g^2 - N^2}} < 0 \quad (3.3)$$

$$\operatorname{tg} \theta_{r,s}^{TM} = \frac{n_g^2}{n_{r,s}^2} \operatorname{tg} \theta_{r,s}^{TE} < 0 \quad (3.4)$$

En estas ecuaciones es conveniente introducir el concepto de índice efectivo, N_{ef} , que se expresa según:

$$N_{ef} = n_g \sin \theta \quad (3.5)$$

De todo lo expuesto, se obtiene una ecuación transcendental que, para un orden de modo m determinado, se puede resolver numéricamente y obtener los índices efectivos de los modos de propagación, N_m , que cumple la condición:

$$n_s < N_m < n_g \quad (3.6)$$

- Modelo electromagnético:

A continuación, trataremos la teoría electromagnética de la luz aplicada a una guía de onda óptica planar, como hicimos anteriormente en el modelo rayos.

Si asumimos que la luz se propaga a lo largo de un medio isótropo, dieléctrico y no magnético, las ecuaciones de Maxwell se reducen a las siguientes expresiones:

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\mu_0 \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{D} = 0 \quad (3.7ab)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = -\epsilon_0 n^2(\vec{r}) \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad \vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (3.7cd)$$

donde E y H representan los campos eléctrico y magnético, respectivamente, ϵ_0 es la permitividad eléctrica del vacío, μ_0 la permeabilidad magnética del vacío y n es el índice de refracción del medio por el que se propaga la luz.

Si suponemos un medio ópticamente inhomogéneo, sus propiedades dependen de la posición por lo que el índice de refracción es función de la posición, $n=n(r)$. A partir de las ecuaciones de Maxwell se obtiene la ecuación de ondas para el campo eléctrico en un medio inhomogéneo:

$$\nabla^2 \vec{E} + \vec{\nabla} \left(\frac{1}{n^2} \vec{\nabla} n^2 \vec{E} \right) - \epsilon_0 \mu_0 n^2 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (3.8)$$

Si asumimos ahora que se trata de una guía de onda planar, donde la luz se propaga en el eje Z, el confinamiento se produce en el eje X y que el índice de refracción solo depende de una coordenada cartesiana, esto es, $n=n(x)$, el campo eléctrico puede escribirse como:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = E(x) \cdot e^{i(\omega t - \beta z)} \mathbf{u}_y \quad (3.9)$$

que, si se introduce en la ecuación de ondas para medios inhomogéneos, se obtiene la ecuación de ondas para las guías de onda ópticas planares:

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} + [k_0^2 n^2(x) - \beta^2] E_y = 0 \quad (3.10)$$

donde k_0 es el número de onda, $k_0 = \omega \sqrt{\epsilon_0 \mu_0}$. Si proponemos una solución de la siguiente forma:

$$E_y(x) = A e^{i\gamma x} + B e^{-i\gamma x} \quad (3.11)$$

donde:

$$\gamma = \sqrt{k_0^2 n^2(x) - \beta^2} \quad (3.12)$$

y teniendo en cuenta que la solución para un modo confinado debe ser oscilatoria dentro de la guía y decrecer exponencialmente en las regiones tanto del sustrato como del recubrimiento, se llega a la siguiente expresión del campo eléctrico:

$$E_y(x) = \begin{cases} Ae^{-\gamma_r x} & x \geq 0 \\ Be^{ik_g x} + Ce^{-ik_g x} & -d \leq x \leq 0 \\ De^{\gamma_s x} & x \leq -d \end{cases} \quad (3.13)$$

donde los distintos parámetros vienen determinados por:

$$\gamma_r^2 = \beta^2 - k_0^2 n_r^2 \quad k_g^2 = k_0^2 n_g^2 - \beta^2 \quad \gamma_s^2 = \beta^2 - k_0^2 n_s^2 \quad (3.14abc)$$

Por otro lado, las condiciones de contorno requieren que el campo eléctrico y su derivada sean continuos en las fronteras, es decir, $x=0$ y $x=-d$. Aplicando esta condición y desarrollando las ecuaciones, se obtiene la condición de resonancia transversal:

$$\text{tg}(k_g \cdot d) = \frac{\left(\frac{\gamma_r}{k_g}\right) + \left(\frac{\gamma_s}{k_g}\right)}{1 - \left(\frac{\gamma_r}{k_g}\right)\left(\frac{\gamma_s}{k_g}\right)} \quad (3.15)$$

Esta ecuación es de tipo transcendental. Como la tangente es una función periódica, podemos escribir:

$$\text{tg}(k_g \cdot d) = \text{tg}(k_g \cdot d + m\pi) \quad (3.16)$$

Aplicando esta propiedad se obtienen las soluciones para los distintos modos de propagación, m .

- Guías de onda planas con gradiente de índice:

En las guías de onda tratadas hasta ahora se supone un perfil de índice de refracción de tipo escalón que, aunque pueda resultar útil como primera aproximación, no deja de ser el caso más general, puesto que diversos métodos de

fabricación producen guías de onda ópticas con perfiles en las que el índice de refracción varía de forma continua con la profundidad. En este caso, se denominan guías de onda con gradiente de índice de refracción y son las estudiadas a lo largo de esta tesis.

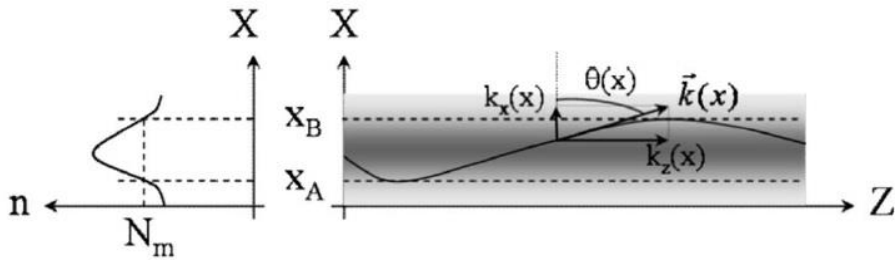


Figura 3.2. Esquema de una guía de onda óptica de gradiente de índice, esto es, con índice de refracción dependiente de la profundidad (derecha) y el correspondiente perfil de índice de refracción (izquierda), extraída de la referencia [38].

Supongamos un perfil de índice de tipo gradiente $n(x)$ como el que aparece en la Figura 3.2, y que la onda se comporta localmente como plana en cada posición y con un vector de onda $k(x)$ dependiente de dicha posición. En este caso, el confinamiento se produce al curvarse la luz hacia las zonas de mayor índice de refracción, a pesar de no tener intercaras bien definidas donde se produzca la reflexión total, como en los casos de las guías anteriores. En este caso, se definen los puntos de retorno (x_A, x_B) como la profundidad en la que la luz cambia de sentido, es decir, aquellos valores que anulan la componente x del vector de onda, k_x . Por tanto, si la onda se encuentra confinada existirá una condición análoga a (3.2) por la que la interferencia deba ser constructiva y la luz se propague. De nuevo, esta condición se relaciona con el cambio de fase que se produce en un camino de ida y vuelta entre los dos puntos de retorno. Si tenemos en cuenta que entre x y $x+dx$ el cambio de fase es $d\phi = k n(x) \cos(\theta) dx$, integrando entre los puntos de retorno se obtiene:

$$\begin{aligned}
 2[\phi]_{x_A}^{x_B} &= 2 \cdot k \int_{x_A}^{x_B} n(x) \cos \theta(x) dx \\
 &= 2 \cdot k \int_{x_B}^{x_A} \sqrt{n^2(x) - N^2} dx
 \end{aligned} \tag{3.17}$$

Además, se puede demostrar que el cambio de fase que se produce en los puntos de retorno es igual a $-\pi/2$, tanto en el caso de polarización TE como TM. Por tanto, para que se produzca la interferencia constructiva necesaria para el guiado, la suma de todos los cambios de fase que experimenta la onda debe ser igual a 2π :

$$\int_{x_A}^{x_B} \sqrt{n^2(x) - N_m^2(x)} dx = \left(m + \frac{1}{2}\right) \cdot \frac{\lambda}{2} \quad (3.18)$$

donde $m=0,1,2\dots$ es, de nuevo, el orden del modo correspondiente. Esta ecuación, al igual que las anteriores, puede resolverse por métodos numéricos y obtener así el valor de los índices efectivos correspondientes a cada modo, N_m .

3.2. Técnicas de fabricación de guías de onda de LiTaO₃

Debido a la importancia del LiTaO₃ (LT) por sus interesantes aplicaciones en la fotónica y en la óptica integrada, se han desarrollado diversas técnicas de fabricación de guías de onda ópticas en este material. A continuación, se resumirán algunas de las técnicas más utilizadas para la fabricación estas guías de onda en LT, como son el intercambio protónico, la difusión de metales y las técnicas que involucran el uso de haces de iones. En este último punto, se distinguirán dos tipos de técnica: la denominada implantación iónica, que utiliza iones ligeros a “bajas energías” (típicamente, H o He a unos pocos MeVs), y la irradiación iónica, la cual hace uso de iones pesados de altas energías (o *SHI*, de sus siglas en inglés) y es la que se utiliza a lo largo de esta tesis.

3.2.1. Intercambio protónico (*proton exchange*)

La técnica de intercambio protónico [77] es uno de los métodos más relevantes de fabricación de guías de onda para dispositivos de óptica no lineal, y ha sido ampliamente usado tanto en LN como en LT.

Esta técnica incluye diversas variantes [78] que explicaremos a continuación, aunque todas comparten el mismo proceso inicial. En él, se sumerge el sustrato en un ácido, normalmente benzoico u otro tipo de ácido orgánico o inorgánico, a temperaturas que se encuentran en el rango 180-250°C. En este proceso, se produce un intercambio entre los iones de Li del cristal y los protones procedentes

del ácido, formándose así una capa superficial, de composición $\text{H}_x\text{Li}_{1-x}\text{TaO}_3$, diferente del sustrato y con un índice de refracción extraordinario superior, dando lugar a una guía de onda en la superficie del cristal. De esta forma, se produce un aumento del índice de refracción extraordinario de ~ 0.03 en LT y ~ 0.12 en LN, mientras que el índice de refracción ordinario disminuye ~ 0.06 en LT y ~ 0.04 en LN (a 633 nm) [79]. Por tanto, este tipo de guías permite guiar la luz solo para una polarización, que es TM.

Se pueden obtener guías de gran salto de índice y bajas pérdidas a través de este método. Sin embargo, algunas propiedades importantes, como la no linealidad óptica, se ven afectadas limitando la posterior aplicación de estas guías. Estas propiedades se pueden restablecer a través de los adecuados tratamientos térmicos, lo cual da lugar a la primera variante de la técnica de intercambio protónico, que se describe a continuación.

Annealing Proton Exchange (APE):

La técnica APE es una de las técnicas más extendidas de fabricación de guías de onda ópticas en LT [74,80], especialmente porque, además de ser una técnica simple, se puede desarrollar a temperaturas menores que la temperatura de Curie. Este hecho es uno de los principales problemas a la hora de fabricar guías de onda en LT, cuya temperatura de Curie es más baja que en el caso de LN.

Las denominadas guías APE se fabrican a partir de una guía PE que se somete a un tratamiento térmico, con temperaturas en el rango de 300-400°C, de manera que los iones de hidrógeno puedan difundirse hacia el sustrato. Este proceso mejora notablemente la calidad óptica de la guía de onda ya que, además de reducir procesos de estrés y profundizar la guía, se produce una recuperación de las propiedades ópticas no lineales de la capa de intercambio protónico. Mediante este proceso, se produce también un cambio de índice mayor que el previamente obtenido en el proceso PE. Esta es una particularidad del LT, tanto en composición congruente como estequiométrica, relacionado con el diagrama de las fases cristalográficas que se obtienen en el proceso PE [52].

Reverse proton exchange (RPE):

Desde su desarrollo [81,82], la técnica de intercambio protónico revertido (RPE, de sus siglas en inglés) se ha convertido en una de las técnicas más usadas para

generar guías de onda enterradas con cambios de índice relativamente altos. Además, las guías RPE son las que han mostrado mayor eficiencia de conversión en los procesos de generación de segundo armónico, tanto en LN como en SLT [52].

Estas guías se fabrican a través de una guía PE, que se somete a un proceso de annealing, APE, y después a un proceso de intercambio protónico revertido. Este proceso consiste en sumergir la guía APE en un fundido rico en Li (generalmente una mezcla de sales) de forma que se produce un intercambio entre los protones de la superficie de la guía y los iones de Li procedentes del fundido, de manera que se recupere la composición original del sustrato en la superficie de la muestra. De esta manera, resulta una capa enterrada de composición que da lugar a la guía de onda. Este proceso requiere altas temperaturas, en torno a 300-350°C de forma que, además del intercambio de iones de Li y protones, se produce una difusión de los protones hacia el sustrato. Por tanto, los procesos APE y RPE van asociados y, de hecho, si se realizan a la misma temperatura, se puede mejorar la calidad de la guía, ya que la difusión de protones ocurre en las mismas condiciones en ambos procesos.

3.2.2. Difusión de metales

En esta técnica, se evapora una capa delgada (100-1000 nm) sobre la superficie del sustrato y posteriormente se calienta a temperaturas suficientemente altas para que los átomos del metal se difundan en el cristal, produciendo así una subida del índice de refracción, tanto ordinario como extraordinario, en la superficie del sustrato y generando por tanto una guía de onda. La temperatura que se usa en este proceso no debe exceder la temperatura de Curie del material sustrato para evitar la despolarización del material y la formación de dominios. Por esta razón, aunque el Ti es uno de los metales más utilizados en esta técnica, no suele aplicarse al LT ya que su temperatura de Curie es menor que la temperatura de difusión del Ti. En su lugar, se utilizan metales como el Zn o el Cu, ya que pueden difundirse a temperaturas relativamente bajas.

Este método permite la fabricación de guías de onda en la superficie, tanto de LN como de LT, con unas pérdidas menores que 1 dB/cm, para ambas polarizaciones de la luz, tanto TE como TM. Sin embargo, la dificultad con la temperatura en LT y

el aumento de la sensibilidad fotorrefractiva (daño óptico) en este tipo de guías, limita su aplicación para generar guías de onda en LT.

3.2.3. Fabricación de guías con haces de iones

A continuación se describen dos técnicas de fabricación de guías de onda que emplean haces de iones. Aunque ambas técnicas hacen uso de la interacción de los iones con el material, hay importantes diferencias, tanto en los procesos físicos involucrados como en las propiedades de las guías de onda que se obtienen, que se describirán a continuación. Cabe destacar que una de las ventajas del uso de haces de iones con respecto a las anteriores técnicas de fabricación presentadas es que las irradiaciones se pueden realizar a temperatura ambiente, eliminando la necesidad de calentar la muestra, lo cual puede ser un problema en materiales como el LiTaO_3 .

Implantación iónica: iones ligeros a “bajas energías”

La implantación iónica convencional hace uso de iones ligeros, típicamente H o He, de bajas energías (unos pocos MeVs). En este tipo de irradiaciones predomina el daño nuclear que, como se comentaba en el apartado 1.2.1, genera defectos estructurales, incluso llegando a la amorfización, al final de la trayectoria de los iones en el material. Estos defectos se traducen en una disminución en el índice de refracción del material en dicha capa enterrada, que actúa como barrera óptica, formándose una guía de onda en la superficie del material.

En la Figura 3.3 se representan las curvas de poder de frenado para un caso típico de este tipo de irradiaciones, además de un esquema ilustrativo con las capas de máximo daño nuclear y daño electrónico señaladas. Como se puede observar, la contribución del daño nuclear predomina en estos casos, mientras que los efectos del daño electrónico son prácticamente despreciables.

Las guías de onda ópticas generadas mediante la implantación iónica, haciendo uso del daño nuclear, tienen un cambio de índice de refracción de hasta 10%, tanto en la polarización ordinaria como extraordinaria, y después de los tratamientos térmicos necesarios para eliminar los centros de color que se generan durante la irradiación, se pueden obtener guías de onda de muy bajas pérdidas (<1 dB/cm). Cabe destacar que, a través de este proceso, se produce una bajada tanto

del índice de refracción ordinario como el extraordinario, contrariamente a lo que ocurre en el LN [83,84]. Se han publicado diversos trabajos sobre guías de onda en LT generadas mediante implantación iónica [83–87].

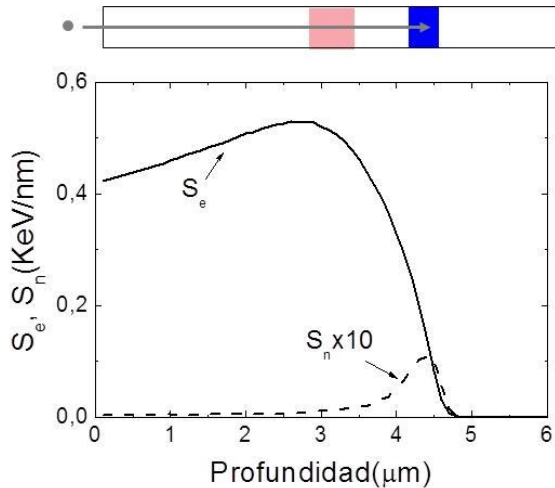


Figura 3.3. Curvas de poder de frenado electrónico (línea sólida) y nuclear (línea discontinua) de iones de He 2 MeV sobre LiTaO₃ con incidencia normal, y esquema ilustrativo donde se señalan las capas de máximo daño nuclear (en azul) y electrónico (en rojo). Nótese que el poder de frenado nuclear se ha multiplicado por diez por claridad.

Esta técnica resulta especialmente útil por su amplia aplicabilidad a distintos materiales, debido a que se puede realizar a temperatura ambiente, lo cual es una ventaja frente a la mayoría de técnicas de fabricación de guías, como se comentaba anteriormente. Además, los parámetros de las guías son fácilmente controlables a través de la energía de los iones y de la fluencia de la irradiación. Sin embargo, las fluencias necesarias para un buen confinamiento óptico son muy altas, del orden de 10^{16} - 10^{17} at/cm², lo cual requiere largos tiempos de procesamiento y altos costes de producción.

Por otro lado, son interesantes los resultados que indican que una capa de daño generada a través de la implantación iónica mejora la inversión de dominios ferroeléctricos en LN [88–90]. Como ya se comentaba, el LT se presenta como una mejor alternativa ya que se pueden generar dominios ferroeléctricos de menor

tamaño que en el caso del LN. Esta es una de las razones que motivan el estudio del daño generado por la irradiación con iones en LT.

Irradiación iónica: iones pesados a altas energías (SHI)

Como alternativa a la implantación iónica clásica, se ha propuesto recientemente el uso de iones pesados ($A > 10$) a altas energías ($E \geq 1 \text{ MeV/uma}$) (también denominados *swift heavy ions*, o SHI) para generar guías de onda de alta calidad en LN [37,91,92] y otros óxidos [93,94]. De esta manera, los iones generan defectos en el material, que forman una capa de daño enterrada, de índice de refracción menor que el del sustrato, produciendo así una guía de onda en la superficie de la muestra. En contraposición con el método de implantación iónica, los defectos estructurales generados en la irradiación están relacionados con las interacciones electrónicas entre el ion y el material, por lo que el daño se genera a través de procesos electrónicos y no nucleares, como en el caso de la implantación con iones ligeros de bajas energías.

En la Figura 3.4 se representa uno de los casos típicos de este tipo de irradiación, que se usa a lo largo de esta tesis, además de un esquema ilustrativo con las capas de daño electrónico y nuclear señaladas. Cabe destacar que, en este caso, también se produce una capa enterrada de daño nuclear, situada detrás de la capa de daño electrónico que da lugar a la guía de onda en superficie.

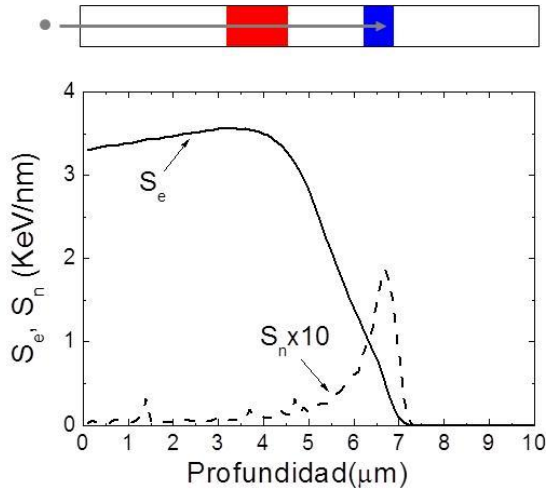


Figura 3.4. Curvas de poder de frenado electrónico (línea sólida) y nuclear (línea discontinua) de iones de F 20 MeV sobre LiTaO_3 con incidencia normal, y esquema ilustrativo donde se señalan las capas de máximo daño nuclear (en azul) y electrónico (en rojo). Nótese que el poder de frenado nuclear se ha multiplicado por diez por claridad.

Mediante esta técnica se produce el guiado de luz para ambas polarizaciones, tanto TE como TM, a través de una guía de gran salto de índice (con un decrecimiento superior al 10%) y con fronteras bien definidas, lo cual da lugar a un alto poder confinante. Además, se ha probado la capacidad de preservar la estructura de dominios ferroeléctricos, lo cual supone una ventaja con respecto a otras técnicas [95]. La ventaja principal que supone esta técnica frente a la implantación iónica convencional es que, además de obtener guías de onda de alta calidad y alto poder confinante, las fluencias necesarias para producir estas guías son varios órdenes de magnitud menores. Por ejemplo, en el caso del LiNbO_3 , se pueden generar guías de onda ópticas debido al daño electrónico inducido en irradiaciones con iones de F a 20 MeV, con gran salto de índice de refracción y de unos 4 μm de profundidad, a fluencias de 2×10^{14} iones/ cm^2 (Figura 3.5, extraída de la referencia [38]).

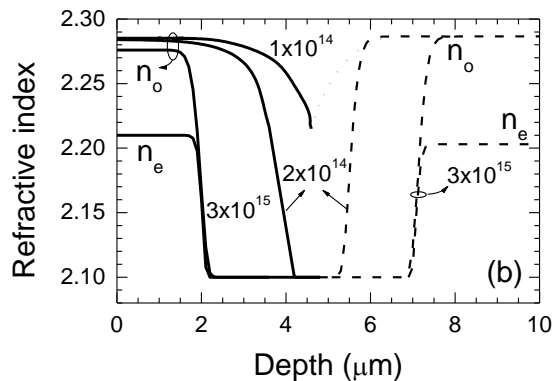


Figura 3.5. Perfiles de índice de refracción de las guías de onda ópticas fabricadas en LiNbO_3 con iones de F a 20 MeV a las fluencias indicadas (en at/cm^2), para la polarización ordinaria (n_o) y extraordinaria (n_e). Imagen extraída de la referencia [38].

No son muchos los trabajos publicados sobre guías de onda en LT usando haces de iones de altas energías (carbono [96,97], argón [98,99] e iones más pesados [100]) e incluso, en el caso de irradiaciones con carbono, muestran resultados contradictorios. Por esto, la investigación del daño generado en LT usando haces de iones de altas energías es la motivación principal para el desarrollo de este trabajo.

3.3. Aplicaciones de guías de onda de LiTaO_3

Las aplicaciones más importantes, tanto del LiTaO_3 (LT) como del LiNbO_3 (LN), se encuentran en el campo de la óptica. El dispositivo de óptica no lineal más simple y fundamental que usa guías de onda es un dispositivo de generación del segundo armónico, en el que la frecuencia de la onda de salida es el doble que la de la onda original. La generación de segundo armónico generada por QPM ha sido centro de mucha atención principalmente debido a su capacidad de obtener luz azul de alta potencia.

La generación de luz azul mediante QPM-SHG en LT se demostró a través de varios experimentos en 1991 [67,101,102], y se ha conseguido generar QPM-SHG en longitudes de onda que se encuentran más cercanas al ultravioleta que en otros

cristales similares, como el LN [103]. Además, como ya se ha comentado, la mayor resistencia al daño óptico que presenta LT en comparación con el LN lo hace un material muy atractivo para su aplicación, ya que se puede obtener en procesos de QPM-SHG una eficiencia de conversión hasta tres veces mayor que en el caso de LN [104,105].

Por otro lado, debido a su alto coeficiente electroóptico, unido al hecho de que se pueden crecer fácilmente grandes cristales de alta calidad óptica, el LT ha sido extensamente usado para generar distintos dispositivos electroópticos [106], como moduladores [107] o lentes electroópticos (deflectores) [108].

También, debido a que sus factores de acoplo electromecánico son muy altos (varios órdenes de magnitud mayor que el cuarzo), tanto LT como LN con materiales muy apropiados para aplicaciones de filtros acústicos de alta frecuencia. Además, debido a sus bajas pérdidas acústicas, son medios muy apropiados para propagación de ondas ultrasónicas en aplicaciones de dispositivos acústicos de microondas (dispositivos SAW) [75].

Además, a pesar de que los coeficientes piroeléctricos, tanto en LT como en LN, son menores que los de la mayoría de cristales piroeléctricos, la temperatura de Curie en contraste es más alta que en la mayoría de los otros materiales. Por tanto, y especialmente LT ya que tiene mayor coeficiente piroeléctrico y menor constante dieléctrica, ambos son materiales muy interesantes como detectores de infrarrojo [109].

PARTE II. Técnicas experimentales

En esta parte de la tesis se detallan las técnicas experimentales usadas durante este trabajo. Primero, se definirán las distintas condiciones de irradiación llevadas a cabo para procesar las muestras que posteriormente se analizarán. A continuación, se explicarán en detalle tanto la caracterización de las guías de onda ópticas fabricadas en dichas muestras, como la caracterización del daño generado en ellas a través de las irradiaciones con iones.

Capítulo 4. Irradiaciones: acelerador de iones

La fabricación de las muestras usadas a lo largo de este trabajo, así como el correspondiente análisis que involucra haces de iones, se ha llevado a cabo en el acelerador alojado en el Centro de Microanálisis de Materiales (CMAM) de la Universidad Autónoma de Madrid [110], que es un acelerador electrostático de tipo tándem, diseñado e instalado por HVE [111–113]. Su funcionamiento se basa en la idea original de Cockroft y Walton de 1932 por la que se crea una diferencia de potencial del orden de los MV que acelera los iones producidos por la fuente. Este tipo de aceleradores tiene la ventaja de que se basan solo en circuitos de estado sólido sin depender de ninguna parte móvil para generar voltaje, a diferencia de los generadores Van der Graff, y alcanzando por tanto una buena estabilización con voltaje de rizado muy bajo, que se traduce en una energía de haz más precisa y estable. La Figura 4.1 muestra una vista panorámica del acelerador y las líneas experimentales del CMAM. A continuación, se describirán brevemente las distintas partes del acelerador y su funcionamiento, aunque se puede encontrar información más detallada en la referencia [114].

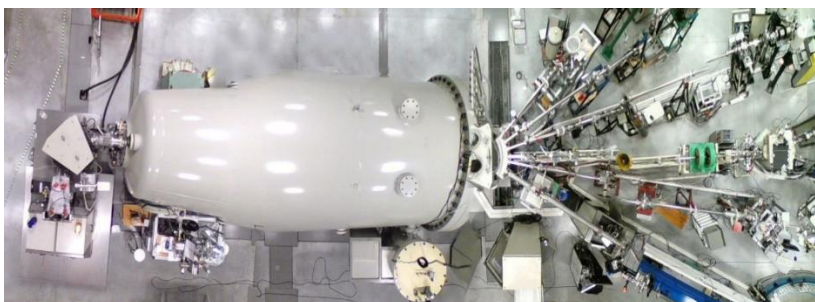


Figura 4.1. Fotografía cenital del tanque del acelerador y las líneas experimentales.

4.1 Fuentes de iones

El acelerador funciona con dos fuentes de iones comerciales de HVE diferentes, la fuente duoplasmatron y de pulverización catódica negativa, con las que se pueden obtener iones negativos de prácticamente cualquier elemento de la tabla

periódica. El funcionamiento de ambos tipos de fuentes se describe a continuación.

4.1.1. Fuente duoplasmatron

La fuente de modelo HVE-358 se usa para generar iones de He, en "modo positivo", sometiendo al gas a dos descargas electrostáticas sucesivas, después son introducidos en el canal de Li donde se produce el intercambio electrónico, por el que se obtienen los iones de He^- . Este proceso resulta necesario ya que es difícil producir de manera eficiente iones negativos de He, junto con otros materiales, de manera directa. En la Figura 4.2 se puede observar un esquema de dicha fuente, además de una imagen de la misma.

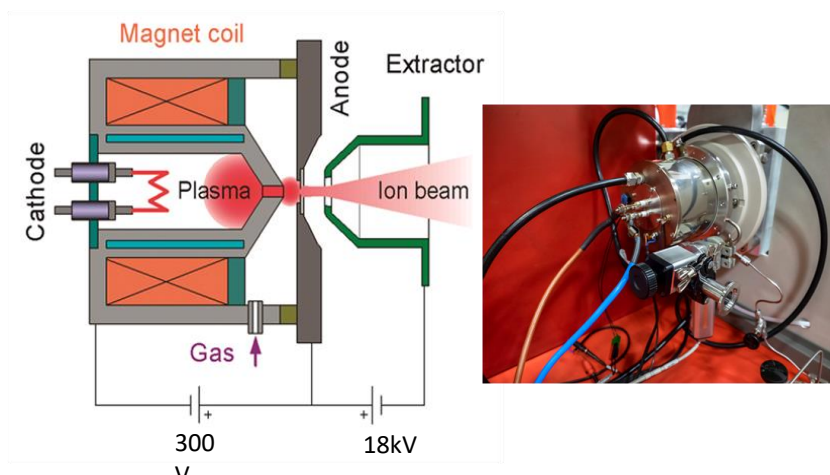


Figura 4.2. Esquema de la fuente de iones de tipo duoplasmatron (izquierda) y fotografía de la misma (derecha).

4.1.2. Fuente de pulverización catódica negativa (*negative sputtering*)

La fuente de *sputtering* modelo HVE 860 es una fuente capaz de producir iones negativos de casi cualquier elemento de la tabla periódica. Estos iones se producen a través del bombardeo de un blanco sólido con iones de Cs^+ . Los iones del blanco que son arrancados atraviesan una capa superficial de Cs neutro, de

manera que se produce un intercambio de cargas, generando iones negativos. Esta es la fuente utilizada para producir iones pesados, y su esquema de funcionamiento se muestra en la Figura 4.3, junto con una imagen de la misma.

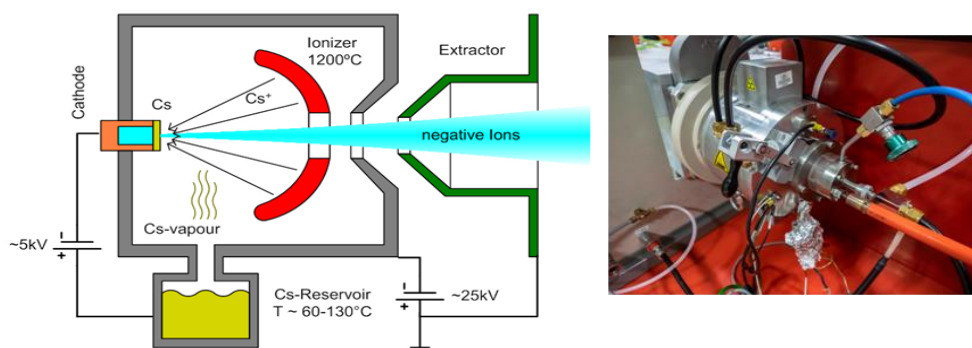


Figura 4.3. Esquema de la fuente de pulverización catódica (izquierda) e imagen de dicha fuente (derecha).

4.2 Tanque de aceleración

Al salir de la fuente, el haz de iones negativos se focaliza a través de un conjunto de lentes Einzel y se hace pasar por un imán que actúa de seleccionador de masas de entre todas las especies que componen el haz en ese punto. Posteriormente, la aceleración del haz se lleva a cabo gradualmente hasta llegar al terminal de máximo voltaje (hasta 5MV en el caso del acelerador instalado en el CMAM), que está localizado aproximadamente a mitad del tanque. En esta región equipotencial se encuentra gas nitrógeno circulando en condiciones de presión que favorecen el intercambio de electrones entre los iones y el N_2 (también denominado *stripper gas*), produciéndose así una fracción considerable de iones positivos. De esta manera, los iones, ahora positivos, son repelidos y de nuevo acelerados hacia la salida del tanque de aceleración, como se muestra en el esquema de la Figura 4.4.

4. Irradiaciones: acelerador de iones

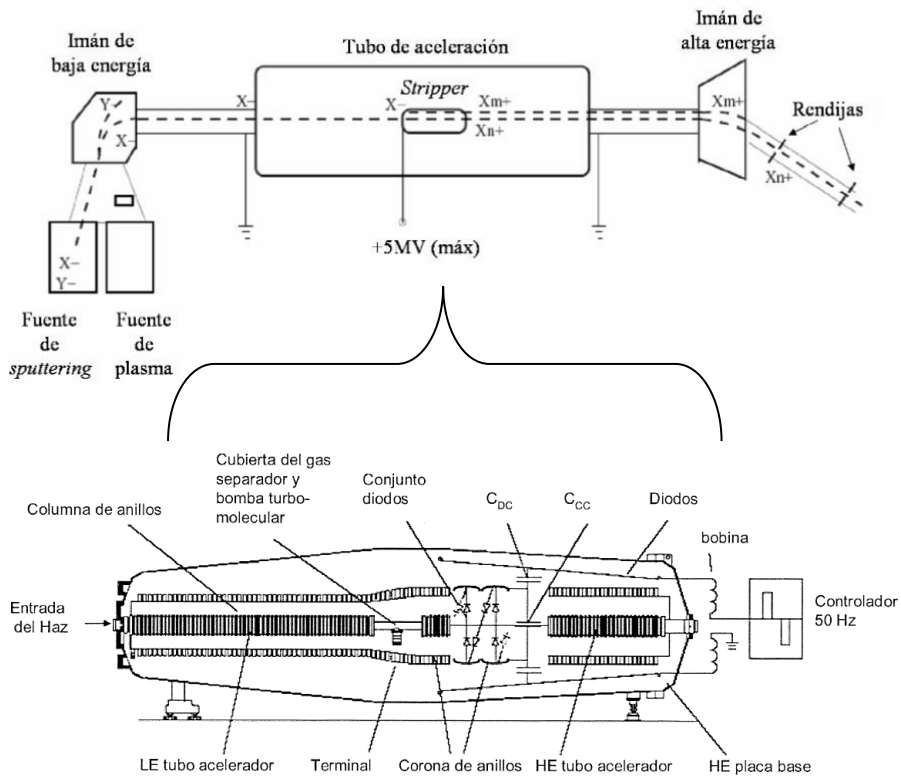


Figura 4.4. Esquema del acelerador que muestra las fuentes de iones, el tubo de aceleración y los imanes utilizados (arriba). Detalle del interior del tubo de aceleración, con sus sitintos componentes indicados (abajo).

Como consecuencia de este proceso, la probabilidad de obtener cada estado de carga depende tanto del tipo de ion y su energía como de la presión del gas stripper, y se describe mediante una distribución de estados de carga, como las que se muestran en la Figura 4.5.

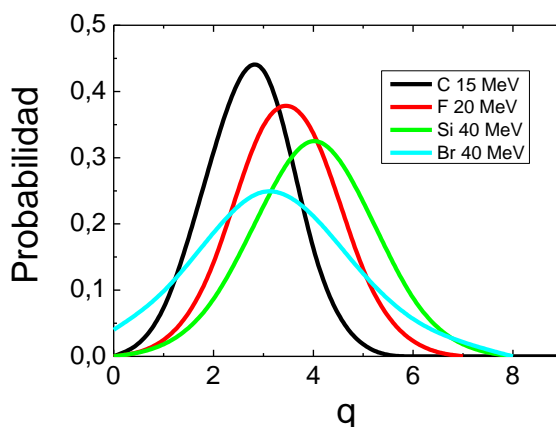


Figura 4.5. Distribución de estados de carga para varios iones.

Por tanto, los iones se aceleran en dos etapas (tándem) y la energía a la que son acelerados depende del estado de carga seleccionado a la salida del tanque, q , y del potencial aplicado en el tubo de aceleración, V , según la ecuación:

$$E = (q + 1) \cdot V \quad (4.1)$$

La distribución de estados de carga en equilibrio se puede calcular usando fórmulas fenomenológicas y se puede comprobar que se favorecen los estados de carga mayores cuanto mayor es la energía con la que los iones llegan al *stripper*. Aunque los estados de carga más favorecidos se encuentran entre +2 y +5, se obtienen de forma rutinaria estados de carga mayores (hasta +8 o +9), con la correspondiente pérdida en población, pero ganando energía. Por ejemplo, para el caso del Si, que es uno de los iones más prolíficos, se obtienen corrientes de $I \sim 1000$ nA para Si^{+4} a 20-30 MeV y en cambio $I \sim 10$ nA para Si^{+8} a 45 MeV.

Una vez que el haz abandona el tubo de aceleración, se focaliza de nuevo a través de varios cuadrupolos electrostáticos y, finalmente, otro imán es el encargado de seleccionar el estado de carga apropiado a la salida del tanque y conducir el haz de iones a la línea experimental correspondiente.

4.3 Líneas experimentales

El imán seleccionador situado a la salida del tanque de aceleración cuenta con siete puertos de salida, localizados a 0° , 10° , -15° , $\pm 30^\circ$ y $\pm 45^\circ$, que corresponden a cada una de las líneas experimentales del acelerador del CMAM. A lo largo de este trabajo se han utilizado dos de estas líneas, la línea *Standard* (STD) y la línea de Implantación (IMP), que se describirán brevemente a continuación.

4.3.1. Línea *Standard* (STD)

La línea denominada Multi-propósito o *Standard*, STD (Fig. 4.6), se desarrolló durante la construcción del acelerador siendo, por tanto, la primera línea de haz en estar operativa. En ella se pueden llevar a cabo distintas técnicas de análisis usando haces de iones (técnicas IBA, de *Ion Beam Analysis*) y la modificación de materiales mediante irradiaciones homogéneas en áreas de unos pocos mm^2 . En esta línea se llevaron a cabo tanto las primeras irradiaciones de la fabricación de guías de onda ópticas de esta tesis, como los experimentos de RBS-c para la caracterización del daño generado en dichas irradiaciones.

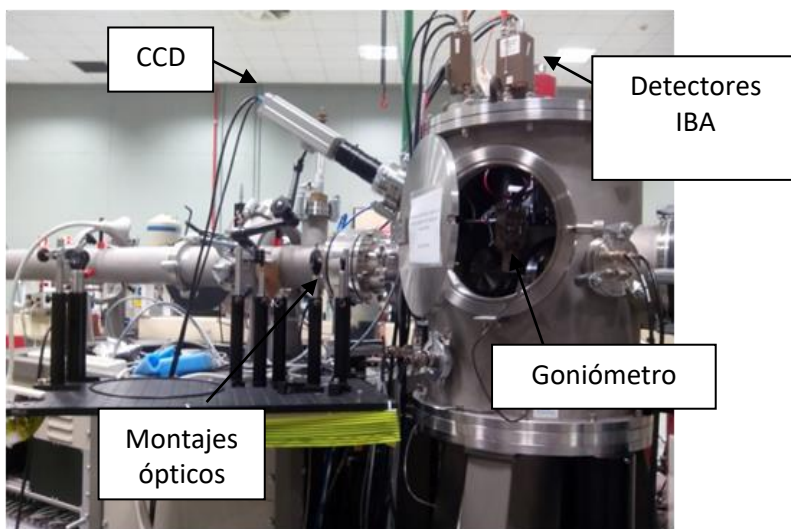


Figura 4.6. Imagen de la cámara de la línea STD, donde se pueden ver la instalación de los distintos detectores, la cámara CCD y la plataforma de montajes ópticos.

La cámara cuenta con un goniómetro (Fig. 4.7) de tres ejes, de la marca (Panmure Instruments), donde se coloca el portamuestras y que permite girar hasta 360° en los ejes X e Y (ángulos *phi* y *theta*, respectivamente) y hasta 60° en el eje Z (*tilt*), con una resolución de al menos 0.01° , además de permitir un desplazamiento vertical (*lift*) de hasta 22 mm, con 0.1 mm de precisión. Este goniómetro se polariza con el fin de reducir los electrones secundarios y poder medir la corriente en muestra durante la irradiación. El tamaño del haz se controla mediante dos rendijas (*slits*) situadas a la entrada de la cámara que definen un haz de forma cuadrada, cuyo área se verifica usando la luminiscencia inducida por los iones de una muestra de SiO_2 (Fig. 4.7). A continuación, tanto una *Faraday cup*, que mide la intensidad del haz de iones, como un perfilómetro de haz (o *BPM*, de sus siglas en inglés *Beam Profile Monitor*) permiten caracterizar el haz que llega a la muestra.

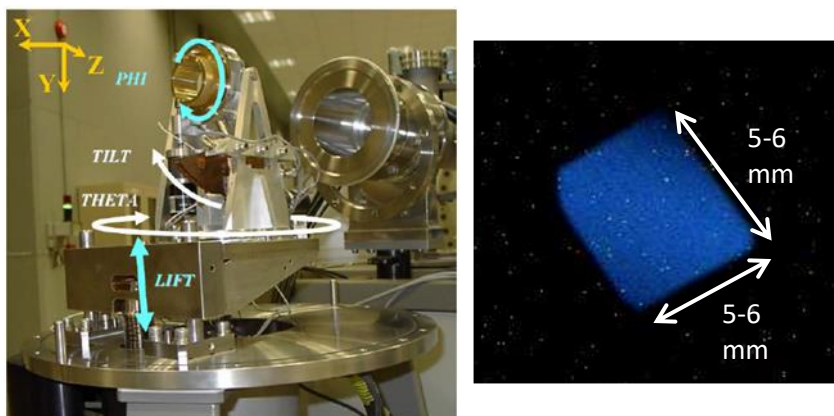


Figura 4.7. Fotografía del goniómetro de la cámara STD donde se coloca el portamuestras (extraída de la referencia [38] (izquierda). Imagen de la ionoluminiscencia de una muestra de SiO_2 en una de las irradiaciones de la línea STD (derecha).

Por otro lado, la cámara tiene instalados una variedad de detectores que permiten llevar a cabo los distintos experimentos de análisis, como la técnica RBS-c que se explicará posteriormente. Además, se han instalado varias plataformas, coincidentes con las ventanas de la cámara de irradiación, para realizar distintos montajes ópticos que permitan la medida de la reflectancia durante la irradiación de las muestras. Estas medidas se explicarán en detalle en el apartado 6.2.

4.3.2. Línea Implantación (IMP)

La línea de Implantación, IMP (Fig. 4.8), ha sido la última en estar disponible para su uso en el CMAM y se diseñó específicamente para la modificación de materiales en áreas más grandes que las obtenidas en la línea STD. Esta línea experimental permite hacer irradiaciones homogéneas de hasta varios cm^2 a través de un barrido electrostático (*sweeper*) del haz de iones en las direcciones X e Y.

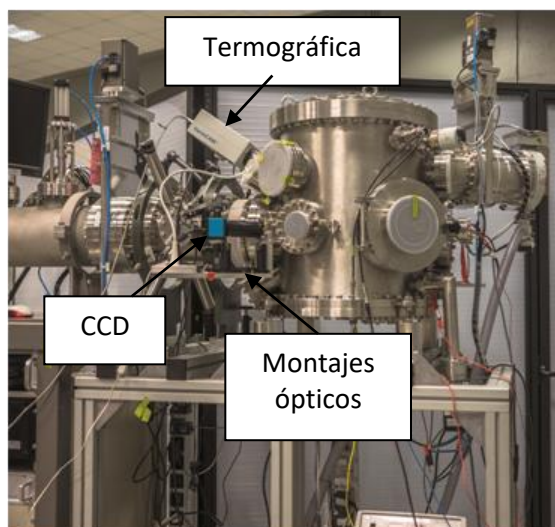


Figura 4.8. Imágen de la cámara de la línea IMP, donde se pueden ver la instalación de las distintas cámaras y la plataforma de montajes ópticos.

Las muestras se montan en un portamuestras de Cu (Fig. 4.9) diseñado específicamente para la cámara de IMP. Antes de la entrada de la cámara, se encuentra una *Faraday cup* que nos permite controlar la corriente del haz que llegará a la muestra, y la temperatura de ésta durante la irradiación se monitoriza usando una cámara termográfica, de la marca InfraTec. El tamaño del haz se programa a través del barrido y su área se verifica siempre a través de la ionoluminiscencia de una oblea de SiO_2 (sílica térmica) (Fig. 4.9).

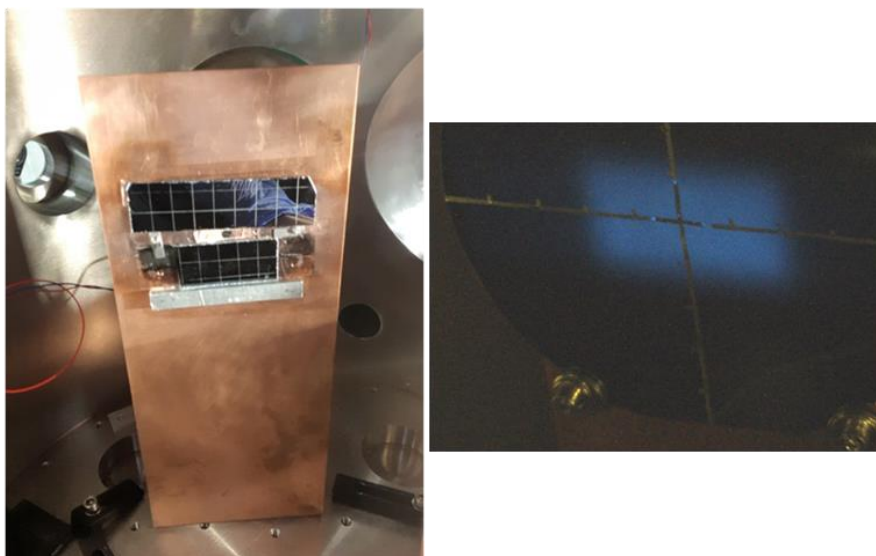


Figura 4.9. Fotografía del portamuestras utilizado en la cámara IMP (izquierda) e imagen de la ionoluminiscencia de una muestra de SiO_2 utilizada para calcular el área de irradiación en esta línea (derecha).

Recientemente, en esta línea también se han instalado varias plataformas coincidentes con las ventanas de la cámara para realizar distintos montajes ópticos, con el fin de medir la transmitancia de las muestras durante su irradiación. Estas medidas se explicarán detalladamente en el apartado 6.2.

Para llevar a cabo las irradiaciones con temperaturas superiores a la temperatura ambiente, se utilizó un horno específicamente diseñado para la cámara de Implantación, que se muestra en la Figura 4.10. La temperatura del portamuestras se controla con un Eurotherm y se mide usando un termopar de tipo N, además de hacerlo con la cámara termográfica. Se ha comprobado que la diferencia entre la temperatura programada y la temperatura en muestra es de $\sim 15^\circ\text{C}$, puesto que se pierde energía a través del pasamuros de la cámara. Este horno está construido con un agujero pasante con el propósito de poder medir la transmitancia también durante las irradiaciones con temperatura.

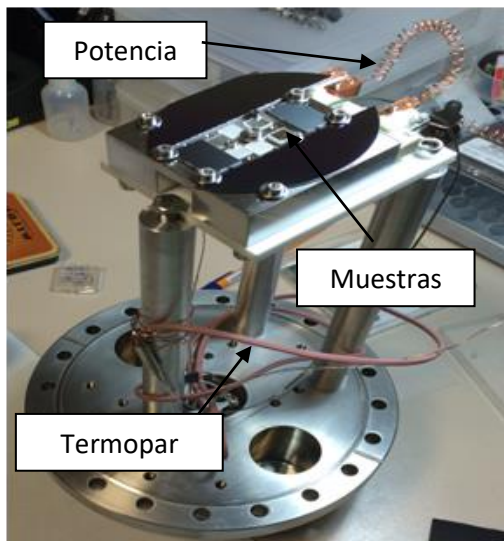


Figura 4.10. Fotografía del horno utilizado en las irradiaciones con temperatura en la cámara de IMP, donde se pueden ver varias muestras montadas, los cables de potencia y el termopar de control.

4.4 Condiciones de irradiación

Las muestras usadas a lo largo de esta tesis son muestras de LiTaO_3 de dos composiciones distintas: las muestras de composición estequiométrica (SLT), de Oxide Corporation, y las de composición congruente (CLT), proporcionadas por Roditi en formato oblea. Todas ellas son de corte Z y de 1 mm de espesor. Las muestras de SLT tienen dimensiones de $4 \times 3 \text{ mm}^2$, siendo de $9 \times 3 \text{ mm}^2$ las muestras más largas utilizadas en este sustrato. Las obleas de CLT se cortaron en muestras de $5 \times 5 \text{ mm}^2$, $10 \times 5 \text{ mm}^2$ y $20 \times 5 \text{ mm}^2$ para llevar a cabo con facilidad las distintas medidas de caracterización. También se han utilizado algunas muestras de LiNbO_3 , de la marca Photox, de composición congruente y corte Z.

Las irradiaciones se llevaron a cabo tanto en la línea STD como en IMP, según las necesidades del experimento. Al comienzo de la tesis, la línea IMP no estaba todavía operativa por lo que el estudio en SLT se realizó por completo en la línea STD, con irradiaciones a 45° de incidencia. El resto de irradiaciones, en CLT, se llevaron a cabo en la línea IMP utilizando varios ángulos de incidencia. Las distintas

medidas de reflectancia *in situ* se realizaron en la cámara STD, mientras que las de transmitancia se realizaron en la cámara de IMP. Las irradiaciones con temperatura se llevaron a cabo en el horno diseñado para la línea IMP.

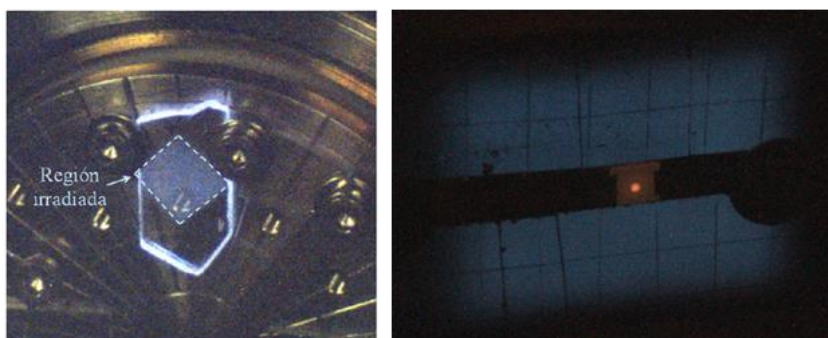


Figura 4.11. Imágenes de una de las irradiaciones llevadas a cabo en la línea STD (izquierda) y en IMP (derecha). Nótese que en esta última imagen se puede observar el punto de luz correspondiente a una medida de óptica in situ.

En la Figura 4.11 se muestran los portamuestras usados en ambas líneas experimentales, en los que las muestras van pegadas con cinta de Cu de doble cara y en algunos casos, con pintura de plata en el borde de las muestras, para evitar efectos de carga en material durante su irradiación. En las irradiaciones con temperatura, las muestras se atornillan al horno, como se mostraba en la Figura 4.10.

4.4.1. SRIM (*Stopping and Range of Ions in Matter*)

Todos los poderes de frenado utilizados en esta tesis se han determinado usando el código SRIM [45], en su versión de 2013, que permite calcular la pérdida de energía en función de la profundidad de penetración de los iones en un material. Este código, que es uno de los más utilizados y de libre acceso, está basado en la aproximación Monte-Carlo de colisiones binarias, en la que cada impacto se elige de forma arbitraria, con una distribución de probabilidad que depende únicamente de la densidad del material.

Aunque la gran mayoría de muestras han sido irradiadas a incidencia normal, esto es, a $\sim 5^\circ$ con respecto a la incidencia del haz para evitar efectos no deseados de canalización de los iones, también se han realizado varios experimentos a 45° y

60° en las dos líneas experimentales utilizadas. En la Figura 4.12 se representan las curvas de poder de frenado electrónico y nuclear, obtenidas de SRIM, para iones de F a 20 MeV en LiTaO_3 a 5°, 45° y 60° de incidencia. También, se muestra un esquema de dichas irradiaciones donde se señala la trayectoria de los iones, las posiciones de los máximos de los poderes de frenado electrónico, S_e , y nuclear, S_n , y la forma del haz observada a través de la ionoluminiscencia en las muestras giradas con los ángulos indicados.

Como se puede observar en la Figura 4.12, en las irradiaciones a 45° y 60°, las simulaciones de SRIM en este caso dan lugar a un poder de frenado electrónico superior, ya que promedia la cantidad de energía depositada para cada profundidad. Cabe notar que esto no ocurre para el poder de frenado nuclear. En ese sentido, si asumimos que en las irradiaciones con ángulo se pierde la misma cantidad de energía al atravesar el material pero en menor profundidad, el cálculo de SRIM a incidencia normal sería el correcto, incluyendo una corrección en la escala de profundidad, que se obtiene del coseno del ángulo al que inciden los iones sobre la muestra puesto que es lo que disminuye la profundidad de penetración, como se puede observar en la Figura 4.13. Esta corrección es la que se utiliza en los poderes de frenado electrónicos de las irradiaciones con cierto ángulo de incidencia presentados a lo largo de este trabajo.

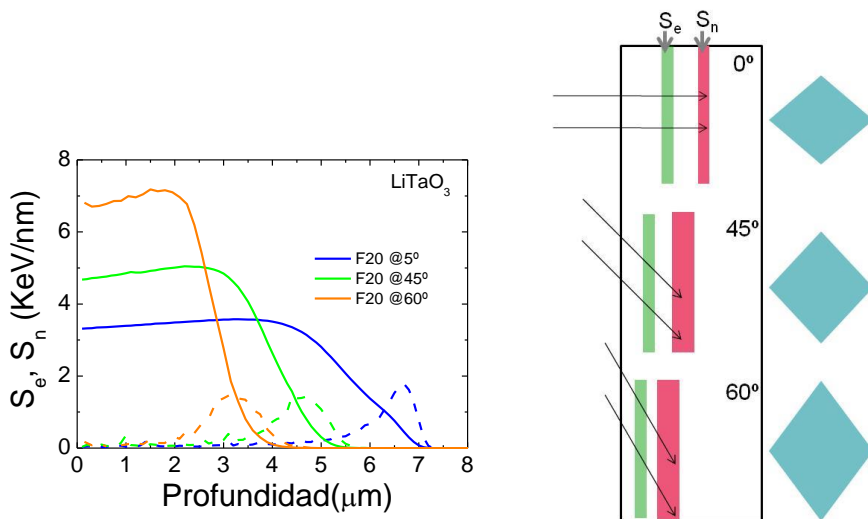


Figura 4.12. Curvas de poder de frenado electrónico (líneas continuas) y nuclear (líneas discontinuas) de iones de F a 20 MeV en LiTaO_3 a 5°, 45 y 60° de incidencia (izquierda). Esquema de estas

irradiaciones con la trayectoria de los iones, las posiciones de los máximos de poder de frenado electrónico, S_e , y nuclear, S_n , y la forma del haz observada en cada caso.

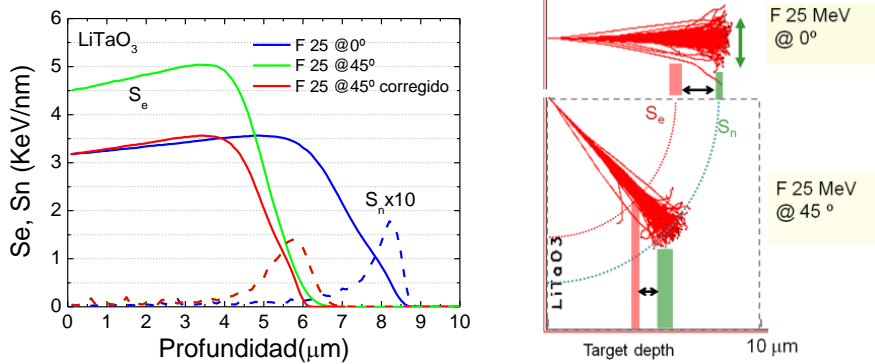


Figura 4.13. Poderes de frenado electrónico y nuclear de iones de F a 25 MeV en LiTaO₃, a 0° y 45° de incidencia (izquierda) comparados con el poder de frenado electrónico corregido a 45°, asumiendo que la pérdida de energía es la misma que a incidencia normal pero en menor profundidad (derecha).

Con el fin de estudiar el daño inducido por los iones en LiTaO₃ en un amplio rango de poder de frenado electrónico, se han realizado irradiaciones utilizando varios iones a distintas energías. En la Figura 4.14 se representan los poderes de frenado frente a la profundidad de algunas de las irradiaciones llevadas a cabo en este trabajo.

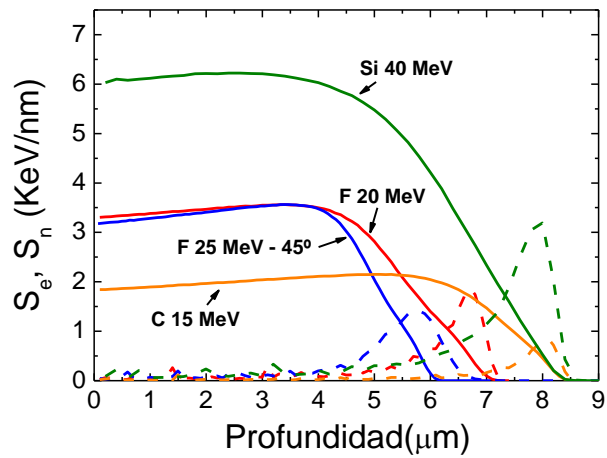


Figura 4.14. Poderes de frenado electrónico (línea sólida) y nuclear (línea discontinua) de varios iones a distintas energías en LiTaO_3 .

Capítulo 5. Técnicas de caracterización de guías de onda ópticas

En este apartado, se explican en detalle las distintas técnicas utilizadas para caracterizar las guías de onda ópticas generadas en LiTaO_3 por medio de irradiaciones con iones pesados de altas energías. Estas técnicas, aunque con distintas variantes, se basan en el método de acoplo de luz a través de un prisma, y permiten la determinación del perfil de índice de refracción de una guía de onda óptica, la anchura de dicha guía o sus pérdidas de propagación ópticas.

5.1 Técnica de acoplo por prisma

La caracterización óptica principal de las guías de onda fabricadas a lo largo de este trabajo se llevó a cabo usando la técnica de acoplo por prisma, en su versión de modos oscuros por reflectancia, que permite medir los ángulos por los cuales se obtienen los índices efectivos de los modos guiados y, a partir de estos, determinar el perfil de índice de refracción de la guía de onda óptica.

5.1.1. Medida de índices efectivos: modos oscuros

Como se ha visto en la descripción teórica de una guía de onda apartado 3.1, solo la luz acoplada para ciertos ángulos discretos será guiada por una guía de onda óptica. Para llevar a cabo la medida de estos ángulos de los modos guiados [115,116], se ha utilizado la luz de una fuente láser He-Ne, de longitud de onda $\lambda=633$ nm, acoplada a la guía de onda óptica a través de un prisma de rutilo (TiO_2) cuyo índice de refracción, n_p ($n_o=2.5831$, $n_e=2.8650$), es mayor que el de la guía de onda, n_g . El prisma se coloca sobre la guía y, con una torreta diseñada específicamente para este fin, se ejerce presión para reducir la capa de aire entre el prisma y la guía y se pueda producir el contacto óptico, de manera que la onda evanescente que escapa del prisma penetre dentro de la guía de onda óptica, produciéndose el acoplo de luz.

La técnica de modos oscuros permite obtener los índices efectivos de una guía de onda óptica a través de la medida experimental del ángulo de acoplo ϕ_m . Para que

exista la propagación de la luz en la guía, el índice efectivo en el prisma debe ser igual al índice efectivo de un modo propagante. Teniendo en cuenta esta condición y algunas expresiones trigonométricas, se puede llegar a las siguientes expresiones:

$$N_{ef} = n_p \cdot \sin \left[\alpha_1 - \arcsen \left(\frac{1}{n_p} \cdot \sin(\alpha_1 - \varphi_1) \right) \right] \quad (5.1a)$$

$$N_{ef} = n_p \cdot \sin \left[\alpha_2 - \arcsen \left(\frac{1}{n_p} \cdot \sin(\alpha_2 - \varphi_2) \right) \right] \quad (5.1b)$$

de las que se pueden obtener los índices efectivos en función del ángulo de acoplo, $\varphi_m = \varphi_1 + \varphi_2$, dado que son conocidos los ángulos del prisma, $\alpha_1 = 53,143^\circ$ y $\alpha_2 = 52,988^\circ$ (Fig. 5.1). Estos ángulos fueron determinados experimentalmente, y el error en la medida es de $\sim 0.01^\circ$.

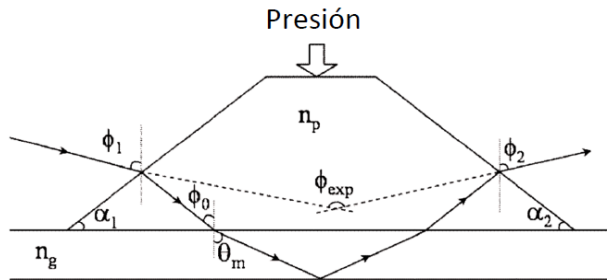


Figura 5.1. Esquema del acoplo de luz a una guía de onda óptica, de índice de refracción n_g , a través de un prisma, de índice de refracción n_p .

El montaje experimental para llevar a cabo la medida se muestra en la Figura 5.2. Después de pasar por un polarizador, el haz de luz se expande y se colima con ayuda de una lente. Finalmente, se focaliza sobre la base del prisma, en el punto donde se ha producido el contacto óptico. De esta manera, al incidir sobre el prisma con un cono de luz ancho, se cubre un intervalo de ángulos de acoplo de forma simultánea. La luz reflejada en la base del prisma se proyecta sobre una pantalla en la que aparecen líneas oscuras, correspondientes a los diferentes ángulos que cumplen la condición de guiado y, por tanto, la luz se acopla dentro

de la guía de onda óptica (modos guiados). Puesto que la guía de onda tiene un perfil de índice de refracción de tipo escalón, esta técnica permite también la observación de las resonancias, como se detallará en el apartado 5.1.3. Con la ayuda de una cruceta de referencia, se miden los ángulos correspondientes a cada modo guiado, φ_m , utilizando un goniómetro con resolución hasta la milésima de grado y con un error absoluto de 0.01° en la medida del ángulo. Teniendo en cuenta el posible error cometido en la medida, se pueden obtener los índices de refracción efectivos, N_{ef} , de una guía con una precisión de 10^{-4} a través de la técnica de acoplo con prisma.

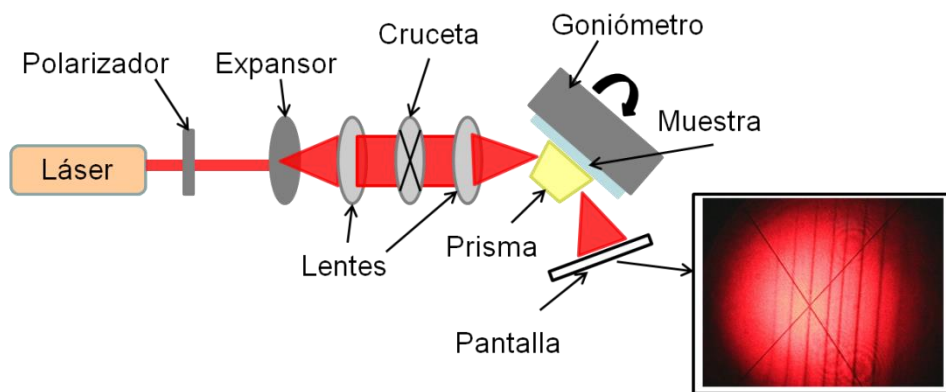


Figura 5.2. Esquema del montaje experimental para la medida de los modos oscuros.

5.1.2. Reconstrucción del índice de refracción: método IWKB

Como se comentaba en el apartado 3.1, la ecuación de ondas para una guía de onda planar, en el modo TE, es formalmente idéntica a la ecuación de Schrödinger, por lo que se pueden aplicar los mismos métodos matemáticos para resolver dicha ecuación. Es el caso de la aproximación WKB (Wentzle, Kramers, Brillouin) [117,118], que si se aplica de forma inversa (IWKB) [119] permite obtener el perfil de índice de refracción a partir de los índices efectivos de los modos guiados, medidos experimentalmente y descritos anteriormente. Esta aproximación es aplicable a perfiles de índice de refracción graduales, $n_g = n_g(x)$, que cumplan la condición de que la variación del índice de refracción sea pequeña en distancias

comparables a la longitud de onda, como es nuestro caso. El método utiliza la siguiente expresión:

$$k \int_0^{x(m)} \sqrt{n_g^2(x) - N^2(m)} dx = m\pi + \phi_r + \phi_s \quad (5.2)$$

donde $N(m)$ es el índice efectivo del modo m , y $x(m)$ su punto de retorno, es decir:

$$n(x(m)) = N(m) \quad (5.3)$$

El cambio de fase en la intercara guía-sustrato es $\pi/4$ para todos los modos [117], y en la intercara guía-aire es:

$$\phi_a = \arctg \left[r_a \left(\frac{N^2(m) - 1}{n_0^2 - N^2(m)} \right)^{1/2} \right] \quad (5.4)$$

donde n_0 es el índice de refracción en la superficie y r_a es igual a 1 para modos TE y $(n_0/n_{aire})^2$ para modos TM.

Este método consiste en construir una función continua de índice efectivo $N(m)$ ajustando, mediante mínimos cuadrados, un polinomio a los valores experimentales de índice efectivo. El índice de refracción en la superficie se obtiene del valor de $N(-0,75)$, donde $m_0 = -0,75$ se obtiene de la condición $x(m_0) = 0$ en la ecuación (5.2).

5.1.3. Medida de resonancias

Esta técnica [120] es una análoga a la anterior, aplicable al estudio de capas superficiales con índice de refracción menor que el del sustrato, siempre y cuando el cambio de índice sea aproximadamente de tipo escalón. Aunque el procedimiento a seguir es idéntico al de la medida de los índices efectivos, descrito previamente, la explicación del fenómeno es ligeramente diferente. En este caso no se produce el fenómeno de reflexión total interna y, por lo tanto, no se produce el guiado de luz. Sin embargo, se produce una interferencia entre el haz reflejado en la superficie de la muestra, y el reflejado en la intercara que separa la capa de índice menor y la capa cristalina, obteniéndose de nuevo franjas oscuras, correspondiendo esta vez a los puntos donde la interferencia es destructiva. Esta

técnica nos permite estimar tanto el espesor como el índice de refracción de la capa de material en estado amorfo, generada en la irradiación con iones. En la Figura 5.3 se representa esquemáticamente el camino que sigue la luz cuando se acopla en una estructura de este tipo.

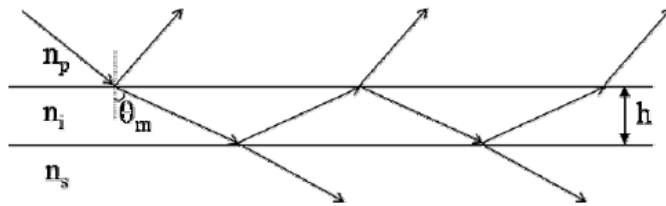


Figura 5.3 Esquema de las múltiples reflexiones en la medida de resonancias.

Para obtener los ángulos en los que aparecen los mínimos en la reflexión hay que tener en cuenta la expresión para la reflectividad [121]:

$$R = \left(\frac{E_r}{E_0} \right)^2 = \frac{I_r}{I_t} = \frac{r_1^2 + r_2^2 + 2r_1r_2 \cos \delta}{1 + r_1^2r_2^2 + 2r_1r_2 \cos \delta} \quad (5.5)$$

donde la diferencia de camino óptica entre dos reflexiones consecutivas es:

$$\delta = 2k_0n_i h \cos \theta_m \quad (5.6)$$

De esta expresión, se puede hallar la diferencia de fase entre las ondas que, al ser la interferencia destructiva, tiene que ser igual a un múltiplo impar de π :

$$2k_0n_i h \cos \theta_m = 2(m+1)\pi \quad m = 0, 1, 2 \dots \quad (5.7)$$

Esta condición es totalmente análoga a la condición (3.2) para la interferencia constructiva por la que se produce el guiado. Por esto, la medida de resonancias se realiza con la misma técnica que los modos oscuros y el sistema experimental es idéntico al usado para la medida de modos oscuros, descrito en el apartado

anterior. De esta manera, de las medidas de los ángulos a los aparecen las franjas oscuras se obtienen los índices efectivos correspondientes a las resonancias. Por tanto, sustituyendo (3.5) en (5.7) se obtiene:

$$N_{ef}^2 = n_i^2 - \left(\frac{\lambda_0}{2h}\right)^2 (m+1)^2 \quad (5.8)$$

Teniendo en cuenta esta expresión, representando N_{ef}^2 frente $(m+1)^2$ (Fig. 5.4) se obtiene una recta de cuya pendiente y ordenada en el origen se pueden extraer la anchura de la capa amorfa, h , y el índice de refracción de la capa de índice inferior, n_i , respectivamente (Fig. 5.4).

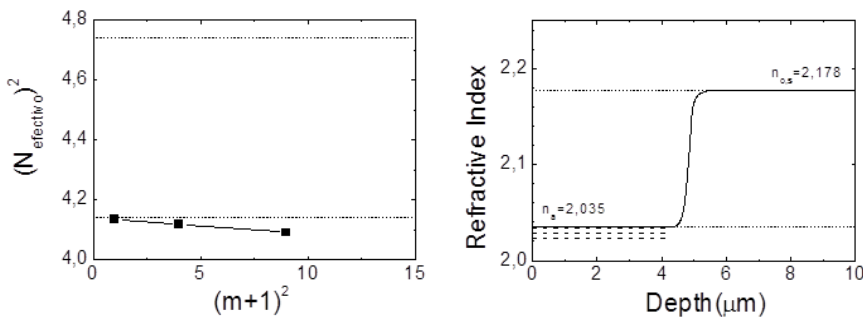


Figura 5.4. Índices efectivos al cuadrado de las resonancias medidas en LiTaO_3 frente a $(m+1)^2$ (izquierda) y esquema del perfil de índice de refracción, con la estimación del índice de refracción amorfo realizada mediante esta técnica (derecha).

5.2 Pérdidas de propagación óptica

Uno de los parámetros más importantes en la caracterización de las guías de onda ópticas son sus pérdidas de propagación óptica. En general, las pérdidas de propagación en una guía de onda óptica están relacionadas con la absorción del material y los defectos que éste pueda contener. Típicamente, las guías de onda ópticas que habitualmente se utilizan en aplicaciones tecnológicas tienen pérdidas por debajo de un 1 dB/cm, por lo que es en torno a este valor de pérdidas de propagación cuando la guía de onda se considera competitiva.

5.2.2. Tratamientos térmicos (*annealing*)

Durante la irradiación de las muestras, se forman centros de color en el material que actúan como centros de absorción de la luz, aumentando así las pérdidas de propagación ópticas. Con el fin de eliminar dichos centros de color, las muestras se han sometido a distintos tratamientos térmicos (*annealings*) a varias temperaturas antes de llevar a cabo la medida de pérdidas de propagación. Estos tratamientos térmicos se han realizado en un horno (Fig. 5.5) en atmósfera de aire, diseñado y construido en el CMAM, que consiste en una placa de aluminio, que contiene una resistencia alimentada con un potenciómetro y está conectada a un controlador de la marca Eurotherm, además de un termopar de tipo N insertado en la placa de aluminio, en la zona más cercana a la posición de la muestra. Los tratamientos realizados fueron todos de una hora de duración, en la que la temperatura programada se alcanza de forma lineal.

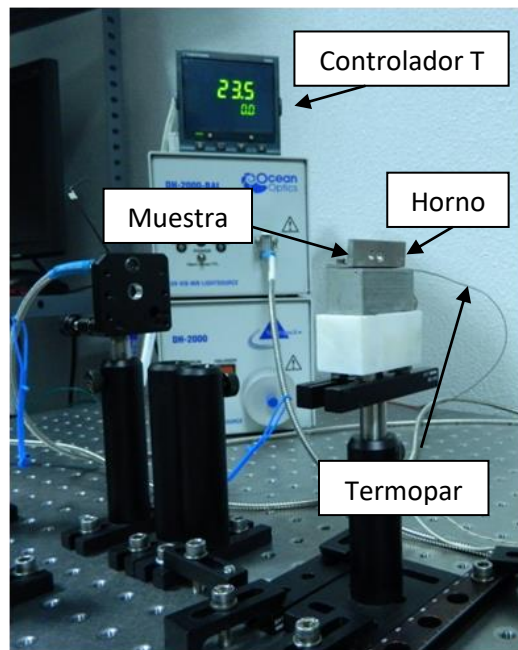


Figura 5.5. Imagen del montaje del horno utilizado para llevar a cabo los tratamientos térmicos en las muestras de LiTaO_3 irradiadas.

5.2.3. Medida de pérdidas de propagación ópticas

Las pérdidas de propagación ópticas se han medido mediante la técnica [122,123] que evalúa el decaimiento exponencial de la luz dispersada fuera de la guía de onda, asumiendo que la intensidad de la luz dispersada es proporcional a la de la luz guiada. En general, esta técnica resulta apropiada para guías de onda ópticas en las cuales la componente principal de las pérdidas sea a través de la luz dispersada por esparcimiento, o *scattering*, y permite medir valores por encima de 0.2 dB/cm. Para ello, se acopla la luz láser a la guía de onda mediante la técnica del prisma, anteriormente descrita, y se toma una imagen de la superficie de la muestra con la luz propagándose por la guía (Fig. 5.6). La cámara utilizada en estas medidas es una CCD (Charged Coupled Device) PCO. pixelfly de 14 bit de rango dinámico.

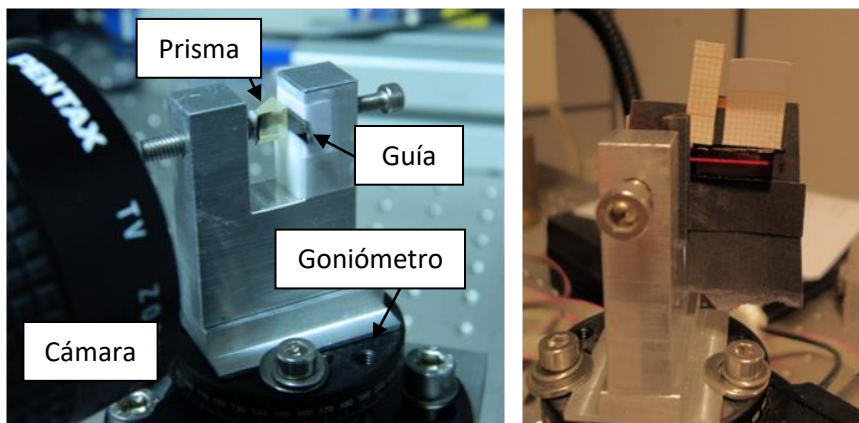


Figura 5.6. Detalle de la torreta utilizada para la medida de las pérdidas de propagación ópticas de una guía de onda en LiTaO_3 (izquierda). Imagen de la luz propagándose en una guía de onda óptica en LiTaO_3 , en el montaje para su medida.

Posteriormente, de una imagen como la mostrada en la Figura 5.7, se extrae una curva de intensidad frente a la longitud de propagación (Fig. 5.7).

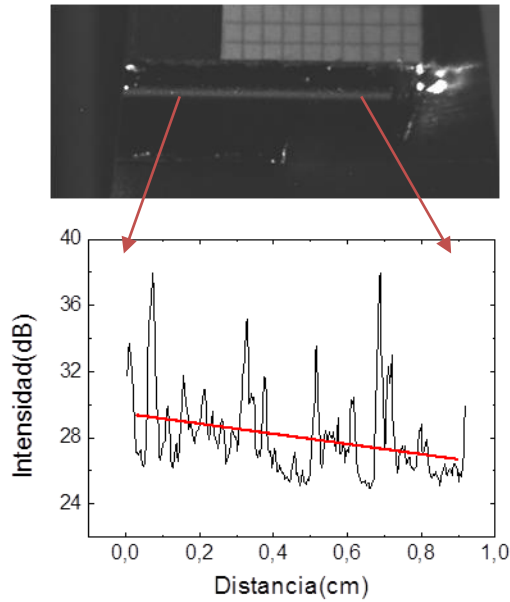


Figura 5.7. Imagen de la propagación de luz en una guía de onda de LiTaO_3 para medir sus pérdidas (arriba) y la curva de intensidad frente a la longitud de propagación extraída de dicha imagen (abajo), de donde se obtienen las pérdidas de propagación a través del ajuste lineal.

De esta forma, representando la intensidad en escala logarítmica frente a la distancia, se obtiene el valor de las pérdidas de propagación ópticas de la pendiente de la recta, según la definición de decibelios por unidad de longitud, que es la magnitud con la que se evalúan estas pérdidas:

$$dB = -10 \log \frac{I}{I_0} \rightarrow \frac{dB}{cm} = 10\alpha \log e \quad (5.9)$$

Capítulo 6. Técnicas de caracterización del daño

6.1 Espectroscopía de retrodispersión Rutherford en configuración canalizada (*RBS-channeling*)

RBS es la primera de las técnicas de análisis de haces de iones que se desarrolló y una de las más utilizadas para la caracterización de materiales, ya que permite conocer la composición elemental en profundidad, de cualquier especie menos el hidrógeno, sin destruir el material. De esta manera, se puede determinar la estequiometría de la muestra o la distribución de las impurezas que pueda contener. Por otro lado, si se lleva a cabo el análisis en configuración canalizada, permite además obtener información sobre el grado de desorden que pueda existir en la red atómica del material, de nuevo en función de la profundidad, y es la configuración utilizada como técnica de caracterización a lo largo de esta tesis. A continuación, se hará una breve descripción de los fundamentos de la técnica, aunque se puede encontrar una información más detallada en la [124,125].

6.1.1. Fundamentos de RBS

En general, un experimento de RBS consiste en irradiar la muestra a analizar con iones ligeros, típicamente H y He con energías del orden de 1MeV/uma, y detectar aquellos iones que han sido retrodispersados por colisiones elásticas con los núcleos de los átomos del material. La energía de estos iones retrodispersados depende de la masa del ion incidente, de la masa del átomo del material con el colisionó y del ángulo de retrodispersión, además de la profundidad a la que se produce dicha colisión y de la densidad atómica del material. Un esquema de la geometría típica de un experimento de RBS se puede ver en la Figura 6.1.

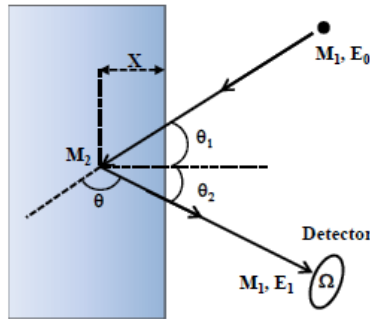


Figura 6.1. Esquema de la geometría de un experimento de RBS.

Cuando un haz de iones de energía E_0 impacta con un material, parte de ellos salen retrodispersados con una energía E_1 , que depende de la masa del ion incidente, M_1 , y de la masa del átomo del material con el que interactúa, M_2 , además de la profundidad, x , a la que se produce la interacción y del ángulo de retrodispersión, θ . Esta dependencia queda descrita por el factor cinemático, que es el cociente entre las energías final e inicial del ion:

$$K = \frac{E_1}{E_0} = \left[\frac{(M_2^2 - M_1^2)^{1/2} + M_1 \cdot \cos \theta}{M_1 + M_2} \right]^2 \quad (6.1)$$

Por otro lado, conforme los iones penetran en el material pierden energía debido al poder de frenado electrónico. Por tanto, el ion tendrá menos energía al llegar al detector cuanto mayor sea la profundidad a la que ocurre la interacción. Se puede entonces determinar dicha profundidad a partir de las diferencias de energía entre un ion dispersado en la superficie de la muestra y otro dispersado a una profundidad x , que viene dado por la siguiente ecuación:

$$\Delta E = \left[K \cdot \left(\frac{dE}{dx} \right)_{entrada} \cdot \frac{1}{\cos \theta_1} + \left(\frac{dE}{dx} \right)_{salida} \cdot \frac{1}{\cos \theta_2} \right] \cdot x \quad (6.2)$$

donde K es el factor cinemático previamente descrito, (dE/dx) es el poder de frenado electrónico en los caminos de entrada y salida del ion en la muestra, y θ_1 y

θ_2 los ángulos de entrada y salida del ion con respecto al plano normal a la superficie de la muestra.

6.1.2. RBS-channeling: medida y análisis de espectros

Como se mencionaba previamente, los análisis de RBS realizados a lo largo de este trabajo se hicieron todos en configuración canalizada. Cuando un haz de iones incide sobre un material de estructura cristalina con la orientación adecuada (a lo largo de un plano cristalográfico), existe una alta probabilidad de que algunos iones penetren en el material a través de los espacios entre hileras o planos de átomos, denominados canales (Fig. 6.2).

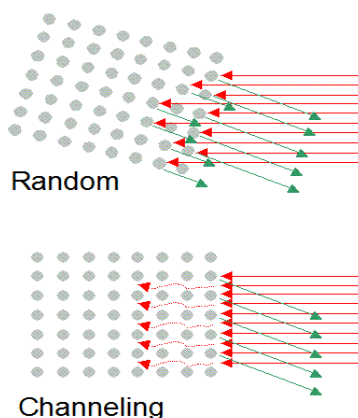


Figura 6.2. Esquema de los iones descanalizados (superior) y canalizados (inferior), según la orientación de los canales de la muestra.

En la configuración en la que los iones son canalizados (*channeling*) se produce una reducción en el número de cuentas en el espectro de retrodispersión, en comparación con el espectro tomado con una orientación aleatoria (*random*), como se observa en la Figura 6.3.

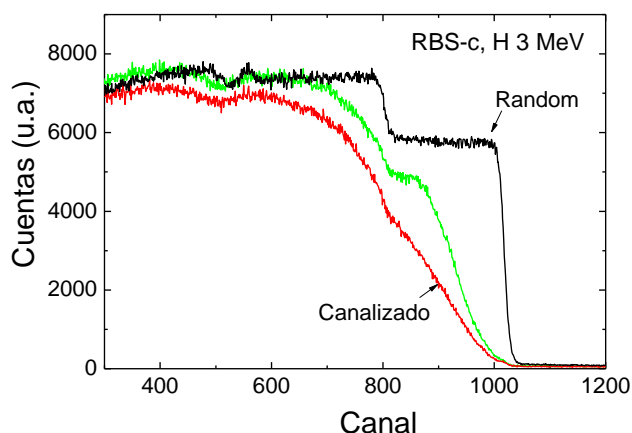


Figura 6.3. Espectros de RBS, en configuración random (en negro) y canalizada (en rojo), para el LiTaO_3 estequiométrico virgen de corte Z, medidos usando iones de H a 3 MeV. También se muestra el espectro en configuración canalizada medido en una guía de onda óptica en LiTaO_3 (en verde).

Una característica importante de esta técnica es que es muy sensible a cualquier imperfección en el cristal. Si la muestra sobre la que inciden los iones contiene defectos, impurezas o zonas donde se ha perdido la cristalinidad del material, se produce un aumento del número de cuentas en el espectro canalizado, como se puede observar en la curva verde de la Figura 6.3, ya que los canales habrían desaparecido produciendo la retrodispersión de los iones. Esta es, por tanto, una técnica muy útil a la hora de estudiar el desorden generado en la estructura de un material cristalino irradiado con iones.

6.1.3. Descripción de los experimentos

Las medidas de RBS-c presentadas a lo largo de este trabajo fueron realizadas en el CMAM, usando el acelerador y la línea STD, descritos previamente. El detector usado para medir los iones retrodispersados es un detector de silicio de barrera de superficie, con una resolución típica de 15 KeV y que está situado a 170° con respecto a la dirección de incidencia de los iones. Este tipo de detector, denominado de estado sólido, funciona produciendo pulsos de carga proporcionales a la energía de la partícula incidente. Por esta razón, es conveniente mantener los valores de la corriente del orden de algunos nA, ya que corrientes demasiado altas pueden provocar que se falsee la medida de los

detectores, bien por ser el tiempo muerto de la cadena de detección demasiado alto o bien por el denominado efecto de solapamiento (o “*pile-up*”), que se produce cuando dos iones llegan simultáneamente al detector, que lo interpreta como un solo ion con energía que es la suma de ambas.

Posteriormente, el pulso de carga producido en el detector pasa por un preamplificador, que transforma el pulso en un pulso de voltaje, y por un amplificador de señal, que transforma el pulso en uno de tipo gaussiano y lo amplifica hasta el rango de los voltios. Finalmente, esta señal pasa por un conversor analógico-digital que mide la altura de cada pulso y manda el resultado digitalizado a un analizador multicanal, donde se van contando los pulsos que llegan de cada amplitud, es decir, los pulsos correspondientes a cada energía, y se van asignando y sumando en cada canal. La relación entre el canal y la energía de los iones retrodispersados es lineal y unívoca, y puede hallarse a través del factor cinemático (6.1), a partir del valor del canal en el que se detectan dichos iones. Además de la correspondencia canal-energía, es necesario establecer la correspondencia canal-profundidad, lo cual se realizó con el programa SIMNRA [126], simulando los espectros de muestras de LiTaO_3 de distintos espesores y hallando así su correspondencia con los canales de energía. Hay que destacar que, aunque mediante este procedimiento se supone que los espectros se toman en configuración *random*, los espectros analizados se obtuvieron en configuración canalizada con el fin de estudiar el daño generado en las irradiaciones. Por ello, esta medida se considera como una medida indicativa de la profundidad y es necesario ampliarla con los resultados de los perfiles de índices de refracción de las guías de onda ópticas analizadas, además de tener en cuenta las predicciones de SRIM para cada caso.

Los espectros en configuración *random* se tomaron fijando los ángulos *theta* y *tilt* del goniómetro (4,3) en una posición que, aunque claramente nos encontramos fuera de orientaciones canalizadas, no es una medida estrictamente independiente de la orientación de la muestra y que puede ocasionar cierto error en la medida, pero siempre menor del 10%. Para llevar a cabo la medida en configuración canalizada es necesario determinar la orientación alineada con los canales del LiTaO_3 . Para ello, se realizó un barrido en *theta* y *tilt*, partiendo de la posición (0,0), analizando los resultados de medidor de cuentas (*ratemeter*) del haz de iones. De esta manera, se van recorriendo distintas posiciones (*theta*, *tilt*) buscando aquellos puntos donde el número de cuentas decrece drásticamente, lo

cual indica que nos encontramos en alguno de los planos cristalográficos del LiTaO_3 .

6.2 Caracterización óptica

6.2.2. Reflectancia y transmitancia insitu

A partir de la técnica de acoplo por prisma descrita anteriormente, se puede obtener los cambios en el índice de refracción solo hasta la capa de daño electrónico (cuando este es suficiente para realizar cambios significativos en el índice de refracción), siendo inaccesibles los datos para profundidades mayores que la de dicha capa. Con el propósito de estudiar los cambios de índice de refracción ocurridos en la capa de daño nuclear, se han realizado diversas medidas de la reflectancia de las muestras en irradiaciones de baja energía, donde el poder de frenado nuclear es máximo en la superficie. Estas irradiaciones se llevaron a cabo en la cámara STD a 45° de incidencia de los iones, de manera que la medida de reflectancia pudiera realizarse a incidencia cuasi normal de la luz, según se muestra en la Figura 6.4 [127].

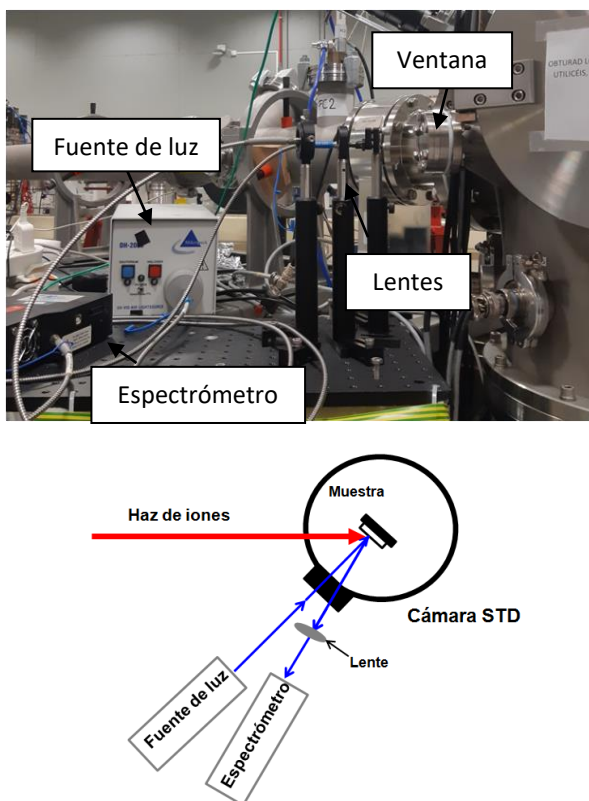


Figura 6.4. Imagen del montaje experimental para la medida de reflectancia in situ en la cámara STD (superior) y esquema ilustrativo de dicha instalación (inferior).

Para realizar estas medidas, las muestras se iluminaron con una lámpara de luz halógena y ultravioleta, a través de una ventana de sílica. El haz reflejado se focaliza con el uso de diversas lentes y se recoge a través de una fibra óptica de sílica de 1 mm de diámetro conectada a un espectrofotómetro Ocean Optics QE6500, que opera en el rango de longitudes de onda de 200 a 900 nm, con el que se registran los espectros de reflectancia en función de la fluencia, con un tiempo de integración de 1 s. De esta manera, a fluencias bajas en las que la amortización del material no se ha alcanzado y no se aprecian interferencias en el espectro de reflectancia (Fig. 6.5), de esta medida se puede obtener el índice de refracción a partir de la relación de Fresnel:

$$R = \frac{(n - 1)^2}{(n + 1)^2} \quad (6.3)$$

en el rango en el que el material no es absorbente y por tanto el coeficiente de absorción, k , es nulo y el índice de refracción es igual al cuadrado de la constante dieléctrica. Dado que la fuente de luz no está polarizada y las muestras utilizadas son todas de corte Z, a través de este método se obtiene el índice de refracción para la polarización ordinaria.

Además, se han realizado medidas de la reflectancia *in situ*, en función de la fluencia, del LT y el LN en irradiaciones con varios iones a distintas energías, con el fin de obtener las cinéticas de daño de ambos materiales y poder compararlas. Para ello, se probaron distintos montajes en la cámara de irradiación, resultando el más fiable el que se muestra en la Figura 6.4 y por tanto el utilizado en las medidas de reflectancia *in situ* realizadas en la cámara STD.

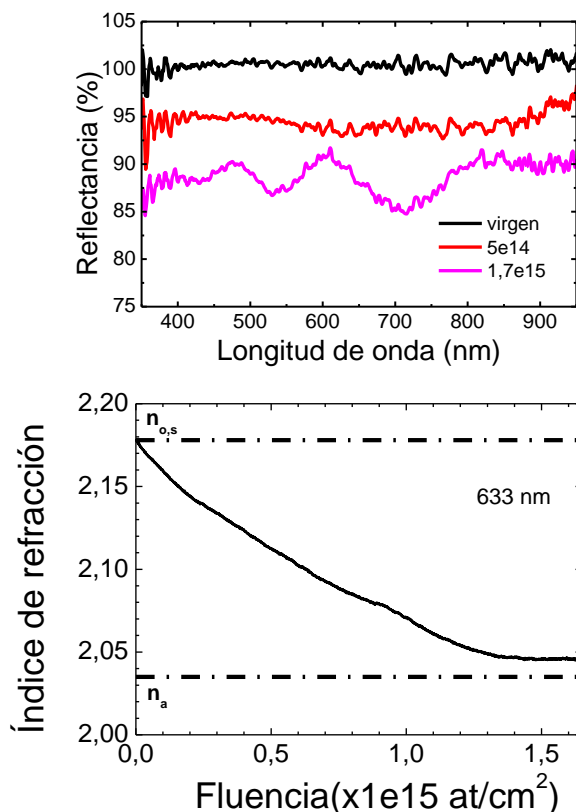


Figura 6.5. Espectros de reflectancia de LiTaO_3 medidos en la irradiación con F a 500 KeV, para distintas fluencias (superior). Curva de índice de refracción obtenida de la medida de reflectancia en función de la fluencia, a 633 nm (inferior). También se indican el índice de refracción del material virgen, $n_{o,s}$ y amorfo, n_a .

Por otro lado, también se ha medido la transmitancia *in situ* del LT en algunas irradiaciones en la cámara IMP siguiendo un esquema muy similar al de las medidas de reflectancia, que se muestra en la Figura 6.6. De nuevo, se utilizó una lámpara de luz halógena y ultravioleta que se hace incidir sobre la muestra, después de ser focalizada con una lente de 100 mm de focal, atravesando una ventana de sílica. La luz transmitida se recoge a través de una ventana simétrica a la de entrada, utilizando una lente de 40 mm y una fibra óptica de 1 mm conectada al espectrofotómetro.

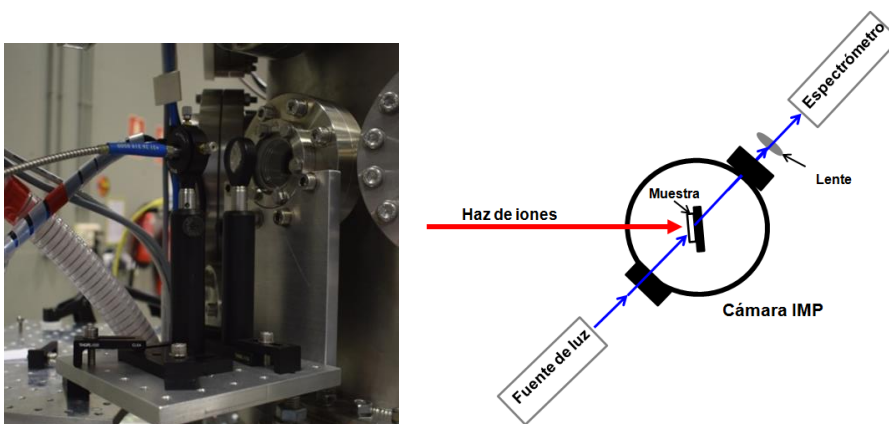


Figura 6.6. Imagen del montaje de la medida de transmitancia en la cámara IMP (superior) y esquema ilustrativo de dicha instalación (inferior).

6.2.3. Transmitancia exsitu

Como se comentaba anteriormente, durante la irradiación de las muestras se generan centros de color, por lo que es necesario someterlas a distintos tratamientos térmicos antes de realizar las medidas de pérdidas de propagación óptica. Con el fin de estudiar la evolución de dichos centros de color al calentar la muestra después de la irradiación, se ha medido la transmitancia de la muestra durante el tratamiento térmico, según el esquema mostrado en la Figura 6.7. Para ello, se utilizó una fuente de luz halógena y ultravioleta que, focalizando con una lente de silica de 100 mm de focal, incide sobre la muestra montada en el horno. La luz transmitida se recoge a través de una esfera integradora que se conecta al espectrómetro, y se registraron espectros cada segundo durante todo el tratamiento térmico, tomando antes la propia muestra como referencia para ver los cambios en su transmitancia en función de la temperatura alcanzada.

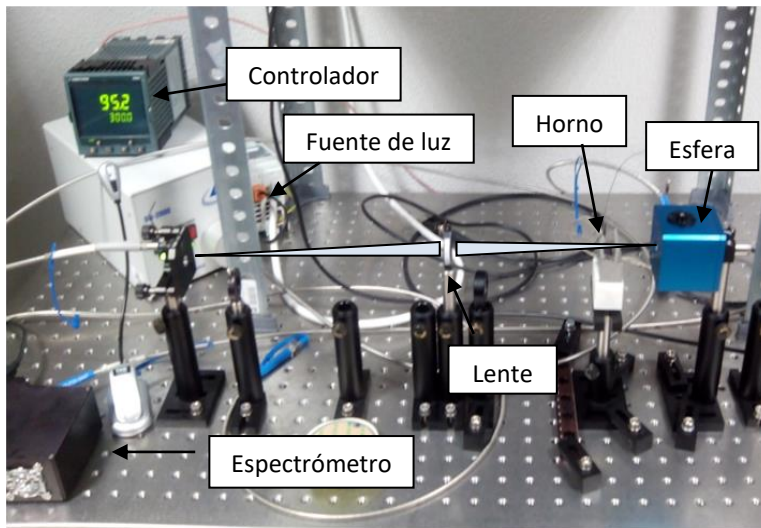


Figura 6.7. Imagen del montaje de la medida de transmitancia realizada durante los tratamientos térmicos.

PARTE III. Resultados y discusión

En esta parte de la tesis se presentan los resultados obtenidos a lo largo de ella. Primero, se exponen las conclusiones sobre las guías de onda ópticas fabricadas en LiTaO_3 en distintas irradiaciones y los resultados sobre la formación de capa amorfa en este material. Por otro lado, se presenta el estudio realizado sobre la sinergia del daño nuclear y daño electrónico inducido por los iones en LiTaO_3 , además de las cinéticas de formación del daño en LiTaO_3 y LiNbO_3 obtenidas a través de medidas de óptica in situ. De estas cinéticas se obtiene un valor experimental del umbral de amorfización del LiTaO_3 . Por último, se presentan algunos resultados complementarios sobre este material, como las conclusiones obtenidas en irradiaciones con temperatura y la caracterización eléctrica de las capas amorfas generadas tanto en LiTaO_3 como en LiNbO_3 .

Capítulo 7. Guías de onda ópticas en LiTaO₃

7.1. Introducción y estrategia

El trabajo centrado en la generación de guías de onda ópticas en LiTaO₃ (LT) a través del daño inducido mediante la irradiación con iones pesados de altas energías se llevó inicialmente a cabo en algunas muestras de composición estequiométrica, gracias a una colaboración con el Prof. Dr. V. Ya. Shur² [128], con el objetivo de estudiar las guías de onda generadas a través de irradiaciones con iones de flúor. Posteriormente, con el objetivo de ampliar dicho estudio, se realizaron distintas irradiaciones en muestras de composición congruente, utilizando tanto iones de flúor como de carbono, silicio y bromo.

Como se comentaba en el apartado 3.2.3, no hay demasiados resultados de guías de onda ópticas en LiTaO₃, además del hecho de que su umbral de amorfización permanece todavía desconocido. Nuestro grupo cuenta con una amplia experiencia previa en LiNbO₃ (LN), entre otros materiales, que es un cristal de características similares que el LiTaO₃, por lo que el conocimiento en el primero de los materiales se ha utilizado como referencia para las primeras irradiaciones llevadas a cabo en LiTaO₃. El estudio aquí presentado se basa en el modelo del pico térmico, por ser el más extendido, aunque los fenómenos que aquí se exponen tal vez puedan ser explicados a través de otro modelo. Con el objetivo de hacer una estimación para el umbral de amorfización del LT, como punto inicial se realizó una comparación entre las propiedades del LT y el LN más relevantes en este modelo.

Según el modelo de pico térmico en la aproximación de Szenes apartado 1.3.1, el poder de frenado electrónico umbral para que se produzca amorfización en un material depende de la densidad del mismo, de su capacidad calorífica y de su

² *School of Natural Sciences and Mathematics, Ural Federal University, 620000 Ekaterinburg, Russia.*

temperatura de fusión. En la Tabla 1.1 se muestran los valores de estas magnitudes del LT y del LN, extraídos de la referencia [129].

	Densidad (g/cm ³)	Cp (J/kgK)	Temperatura de fusión
LiTaO ₃	7,46	426	1650°C = 1923K
LiNbO ₃	4,5	639	1257°C = 1530K

Tabla 7.1. Comparación de la densidad (en g/cm³), el calor específico (en J/kgK) y la temperatura de fusión (en °C y en K) del LiTaO₃ y el LiNbO₃.

Teniendo en cuenta estos datos, y asumiendo que la temperatura de irradiación es de 25 °C (298 K) en ambos casos, se puede calcular la relación entre el umbral de amorfización de ambos materiales:

$$\frac{S_{e,th}^{LT}}{S_{e,th}^{LN}} = \frac{\rho^{LT} c^{LT} (T_m^{LT} - T_{irr})}{\rho^{LN} c^{LN} (T_m^{LN} - T_{irr})} = 1,39 \quad (7.1)$$

Ya que el valor del umbral del poder de frenado electrónico en LN es conocido, $S_{e,th}^{LN}=6$ KeV/nm [13], se puede estimar que el valor umbral del poder de frenado electrónico de LT es de, aproximadamente, $S_{e,th}^{LT}=8,4$ KeV/nm.

Por tanto, como punto inicial y eligiendo un caso conservador, se llevaron a cabo irradiaciones con iones de flúor, ya que estos pueden generar guías de onda ópticas en LiNbO₃ por medio del daño electrónico inducido por los iones a fluencias moderadas, del orden de $1e14$ iones/cm² (apartado 3.2.3). Estas irradiaciones se realizaron en muestras de LT, de composición tanto congruente como estequiométrica. Sin embargo, a partir de dicho punto, el estudio de guías de onda ópticas se centra en muestras de LT de composición congruente, principalmente debido al hecho de que resultan más fáciles de obtener que aquellas de composición estequiométrica. Por otro lado, también se realizaron irradiaciones utilizando iones de carbono y de silicio, con el fin de estudiar las guías de onda ópticas generadas en LT para distintos valores del poder de frenado electrónico, menores al umbral de amorfización estimado para este material. Por último, se realizaron irradiaciones con iones de bromo en LT, cuyo poder de frenado electrónico es mayor que el valor de la estimación del umbral de amorfización, con el objetivo de caracterizar las trazas amorfas generadas en LT y poder compararlas con aquellas generadas en LN.

7.2. Guías de onda ópticas fabricadas en LiTaO_3 con iones de flúor

Las curvas de poder de frenado tanto electrónico como nuclear de iones de F a 20 MeV se muestran en la Figura 7.1 para el LiTaO_3 y el LiNbO_3 . Como se puede observar, ambos materiales presentan curvas similares, lo que favorece la elección de comenzar el estudio de guías de onda ópticas en LiTaO_3 con irradiaciones con iones de flúor.

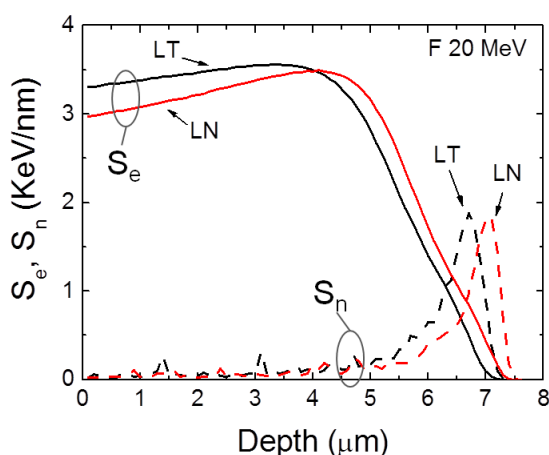


Figura 7.1. Poderes de frenado electrónico, S_e , y nuclear, S_n , de iones de F 20 MeV en LiNbO_3 y LiTaO_3 a incidencia normal.

A continuación, se presentan los resultados obtenidos en las guías de onda ópticas fabricadas en LiTaO_3 a través de la irradiación con iones de flúor a 20-25 MeV, y se dividen en dos secciones de acuerdo con la composición del material, según sea estequiométrica (SLT) o congruente (CLT).

7.2.1. Irradiaciones en LiTaO_3 estequiométrico con F a 25 MeV a 45°

La fabricación de las guías de onda ópticas en LiTaO_3 de composición estequiométrica se llevó a cabo a través de irradiaciones con F 25 MeV a 45° de incidencia. Estas irradiaciones se realizaron en la línea STD del acelerador de iones

donde, como se comentaba en el apartado 4.3.1, el área de irradiación es de unos pocos milímetros, por lo que las irradiaciones se realizaron a 45° con el fin de generar guías de onda ópticas más largas. Las curvas de los poderes de frenado electrónico y nuclear correspondientes a esta configuración se muestran en la Figura 7.2. Como se puede observar, estas curvas presentan un máximo situado en $3,6 \mu\text{m}$, en el caso del poder de frenado electrónico, y a $5,8 \mu\text{m}$, en el caso del nuclear.

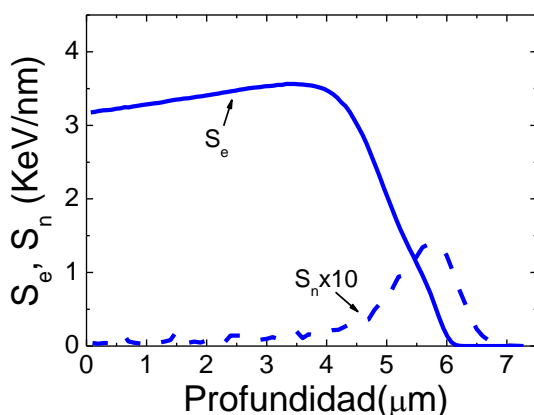


Figura 7.2. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea de puntos) para iones de $\text{F } 25 \text{ MeV}$ en LiTaO_3 a 45° de incidencia. Cabe destacar que la curva de poder de frenado electrónico representada corresponde a la curva corregida a 45° , según se expone en el 4.4.1.

Los índices de refracción efectivos de cada modo de propagación obtenidos experimentalmente y los correspondientes perfiles de índice de refracción de las primeras guías de onda ópticas fabricadas en SLT se muestran en la Figura 7.3, para la polarización ordinaria de la luz. Como se puede observar, a medida que se incrementa la fluencia se produce una disminución del índice de refracción, que alcanza su valor máximo en cada curva a los $5,8 \mu\text{m}$ de profundidad. Esta posición coincide con la del máximo de poder de frenado nuclear calculado con SRIM (Fig. 7.2), por lo que el daño generado en el material es principalmente debido a interacciones de tipo nuclear. En el resto de la trayectoria del ion, en cambio, no se produce apenas daño en el material, por lo que el índice de refracción apenas disminuye en la superficie de la muestra.

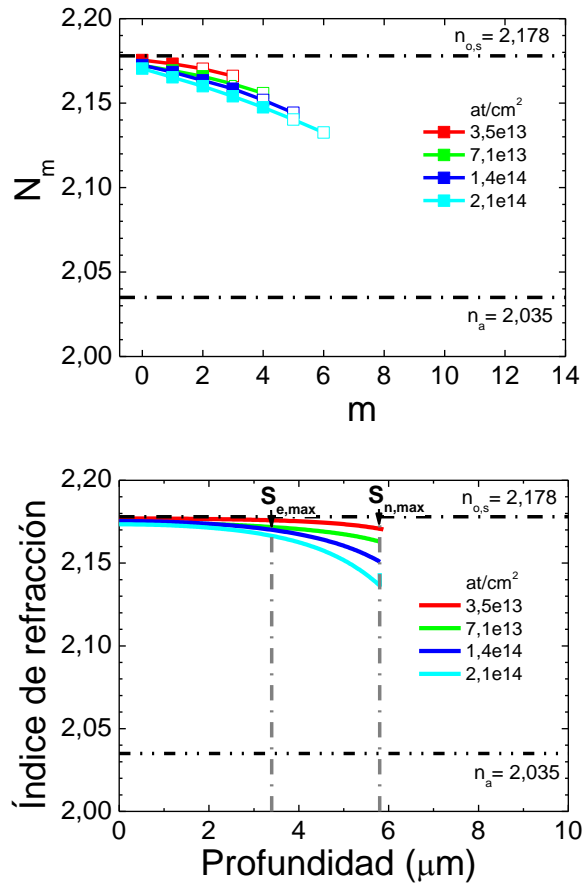


Figura 7.3. Índices efectivos (superior) y perfiles de índice de refracción (inferior), para la polarización ordinaria, de las primeras guías fabricadas en SLT con F 25 MeV a 45°. También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{o,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear, S_n , y electrónico, S_e .

Estos resultados demuestran que se pueden generar guías de onda por medio del daño nuclear de iones de F a 25 MeV en SLT a fluencias en torno a $1e14$ at/cm². Si comparamos estos resultados con los del LN, en el que a las mismas fluencias se obtienen ya guías de onda por medio del daño electrónico, podemos deducir que el umbral de amortiguación del LT es más alto que el del LN, como ya se había estimado en el apartado anterior.

En la Figura 7.4 se muestran los resultados de la serie completa de guías de onda ópticas fabricadas en SLT mediante la irradiación con iones de F a 25 MeV, a 45° de incidencia. La medida experimental de los índices efectivos de cada modo de propagación y la correspondiente reconstrucción de los perfiles de índice de refracción se representan tanto para la polarización ordinaria (n_o , 7.4a) como extraordinaria (n_e , 7.4b) de la luz.

Como habíamos comentado, en las fluencias más bajas necesarias para producir una guía de onda óptica en LT, la variación en el perfil de índice de refracción es proporcional a la curva de poder de frenado nuclear, alcanzando su máximo en $5,8 \mu\text{m}$. A medida que se incrementa la fluencia, la posición donde se alcanza el valor mínimo en el índice de refracción, es decir, el punto de máximo daño en la muestra, se desplaza hacia menores profundidades, además de mostrar un decrecimiento del índice de refracción a lo largo de todo el perfil de índice de refracción, desde la superficie de la muestra. En la guía de onda de fluencia $1,1 \times 10^{15}$ iones/ cm^2 , el valor mínimo de índice de refracción se ha desplazado hasta los $3,6 \mu\text{m}$ de profundidad, alrededor de la misma posición donde se encuentra el máximo en la curva de poder de frenado electrónico. Además, dicho valor corresponde al valor del índice de refracción del LiTaO_3 amorfo obtenido experimentalmente, que se presentará en el apartado 5.1.3, y presenta un perfil de índice de refracción bastante abrupto, similares a los obtenidos en el caso del LiNbO_3 . Si aumentamos esta fluencia hasta prácticamente el doble, $2,1 \times 10^{15}$ iones/ cm^2 , la capa de daño se desplaza a profundidades incluso menores, provocando un drástico decrecimiento en el perfil de índice de refracción cercano a la superficie de la muestra, como también ocurre en las guías de LN [25]. Estos resultados muestran que también es posible obtener guías de onda ópticas en SLT a través del daño electrónico inducido por los iones.

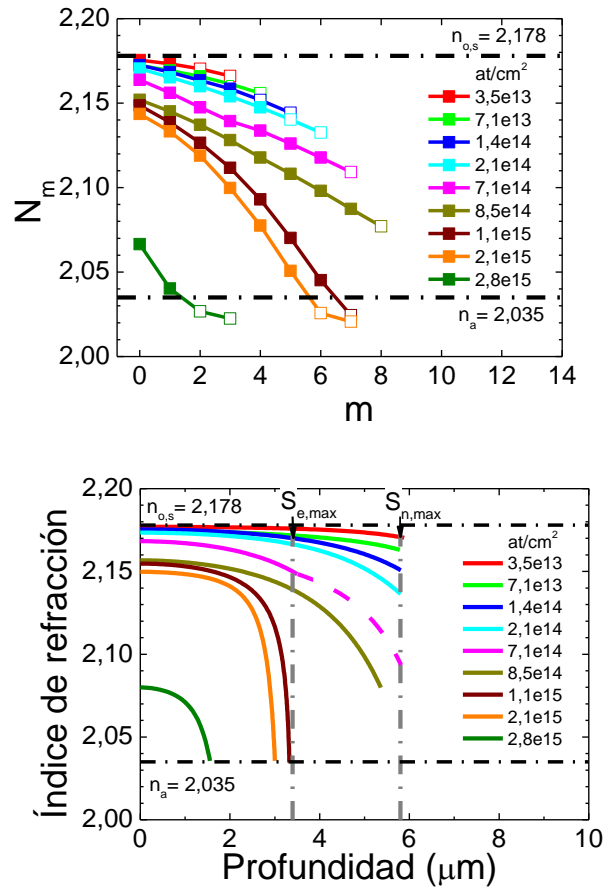


Figura 7.4a. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior) de las guías de onda fabricadas en SLT con iones de F a 25 MeV a 45° de incidencia, para la polarización ordinaria, n_o . También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{o,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear y electrónico, S_n y S_e respectivamente.

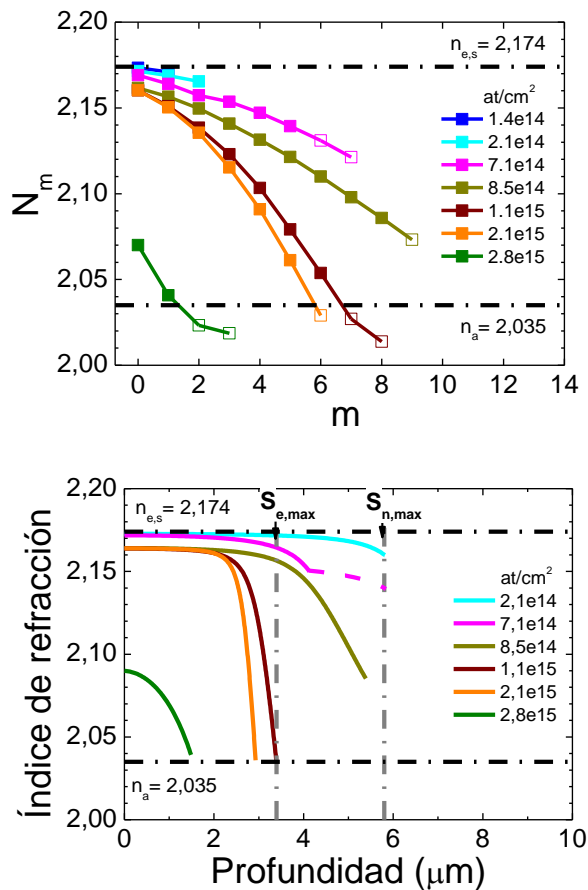


Figura 7.4b. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior) de las guías de onda fabricadas en SLT con iones de F a 25 MeV a 45° de incidencia, para la polarización extraordinaria, n_e . También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{e,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear y electrónico, S_n y S_e respectivamente.

Por lo tanto, se pueden generar guías de onda ópticas en SLT por medio del daño inducido por iones de F a 25 MeV de caracter tanto nuclear como electrónico, dependiendo de la fluencia de irradiación alcanzada. De hecho, como se puede observar en la (Fig. 7.4), existe una fluencia de corte, 7,1e14 iones/cm², que presenta dos perfiles de índice de refracción diferentes, representados con línea continua y línea discontinua en el gráfico. En la Figura 7.5 se muestra una imagen

de la medida experimental de los índices efectivos de las guías de onda ópticas de fluencias $7,1\text{e}13$ y $7,1\text{e}14$ iones/cm². En esta última, se puede apreciar un cambio en el patrón de los modos de propagación de dicha guía de onda, lo que lleva a la reconstrucción de dos perfiles distintos de índice de refracción.

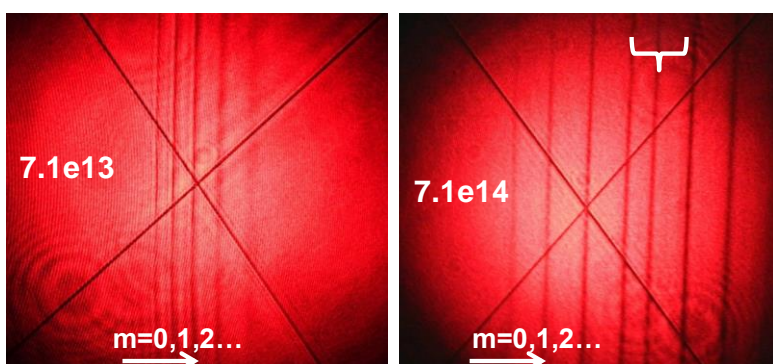


Figura 7.5. Imagen de la medida de índices efectivos a través de la técnica de modos oscuros para las guías fabricadas en SLT usando iones de F 25 MeV a 45° para las fluencias $7,1\text{e}13$ (izquierda) y $7,1\text{e}14$ iones/cm² (derecha). En la figura se indica el orden creciente de los modos, además del cambio en el patrón de la fluencia mayor.

Estos resultados indican que la irradiación con iones de F a 25 MeV de SLT genera, a fluencias del orden de $1\text{e}14$ iones/cm², guías de onda ópticas inducidas por las interacciones de tipo nuclear. Al incrementar la fluencia de irradiación, en fluencias un orden de magnitud mayores, esto es, $1\text{e}15$ iones/cm², las guías de onda que se generan son debido a las interacciones de los iones de tipo electrónico con los átomos del material. De esta manera, la transición entre el régimen de obtención de guías de onda ópticas de tipo nuclear y el régimen de tipo electrónico ocurriría a fluencias de irradiación en torno a $7\text{e}14$ iones/cm².

Hasta aquí, se han generado con éxito guías de onda ópticas en SLT por medio del daño nuclear y electrónico inducido por iones de F a 25 MeV a 45° de incidencia. Estos resultados presentan una significativa diferencia con respecto a las guías fabricadas en LN ya que, además de evidenciarse los efectos del daño electrónico a fluencias un orden de magnitud mayores que en el caso del LN, en este último material el daño electrónico es suficiente como para actuar a bajas fluencias, del orden de $1\text{e}14$ iones/cm², desplazando la capa de daño a profundidades menores de donde se produce el máximo daño nuclear, mientras que en el caso del LT dan lugar a guías de onda de carácter puramente nuclear y a medida que se

incrementa la fluencia de irradiación, el daño electrónico se hace evidente e incluso acaba dominando frente al daño nuclear. Estas conclusiones indican la existencia de una sinergia entre el daño nuclear y electrónico, que se estudiará en profundidad en el capítulo siguiente.

Con el fin de ampliar la caracterización del daño presente en las guías de onda mostradas anteriormente, se ha aplicado en algunas de ellas la técnica de RBS-c con iones de H 3 MeV, que permiten analizar el desorden inducido en el material en los primeros micrometros de la superficie. En la Figura 7.6 se muestran los espectros de RBS-c en función de la profundidad obtenidos para las guías de onda fabricadas en SLT con iones de F 25 MeV a 45° , además de los espectros de una muestra virgen, en configuración *random* y canalizada, como referencia.

Para las fluencias más bajas, se puede observar una banda creciente en profundidad, asociado al máximo daño presente en el material, cuyo pico coincide con la posición de máximo daño observado en los perfiles de índice de refracción, esto es, en torno a $5,8 \mu\text{m}$. Al incrementar la fluencia, la capa de daño aumenta y se desplaza hacia la superficie de la muestra. En la fluencia $2,1 \times 10^{15}$ iones/ cm^2 se alcanza la completa amorfización del material a partir de la profundidad que coincide con la posición del máximo de daño electrónico, alrededor de $3,6 \mu\text{m}$.

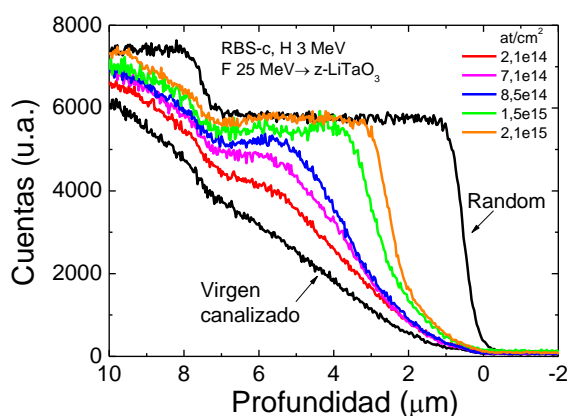


Figura 7.6. Espectros de RBS-c usando H 3 MeV en las guías de onda fabricadas en SLT con iones de F 25 MeV a 45° de incidencia. Los espectros de una muestra virgen también se representan, tanto en configuración *random* como canalizada.

Por otro lado, cabe destacar la alta cristalinidad en las regiones cercanas a la superficie de las muestras irradiadas, puesto que no presentan daño en los primeros micrómetros. Esto indica que la disminución de índice de refracción observada a lo largo de todo el perfil de las guías de onda ópticas no está asociado directamente al daño estructural generado por los iones, sino que puede estar relacionado con el estrés o tensiones inducidas en el material, el cual ha sido un tema estudiado a través de microscopía electrónica de emisión (TEM) en implantaciones de bajas energías en LT [130].

Por tanto, los resultados obtenidos mediante RBS-c corroboran las conclusiones obtenidas de los perfiles de índice de refracción de las guías de onda ópticas fabricadas en SLT, además de demostrar el potencial de esta técnica para analizar el daño generado en el material a través de las irradiaciones con iones.

7.2.2. Irradiaciones en LiTaO_3 congruente con F a 20 MeV a 5°

Los resultados presentados hasta este punto corresponden a las guías de onda ópticas generadas en LiTaO_3 de composición estequiométrica (SLT), a través de irradiaciones con iones de flúor. Se han llevado también a cabo distintas irradiaciones con F 20 MeV en LT de composición congruente (CLT). Estos experimentos se realizaron en la línea de Implantación del acelerador, a incidencia normal. Las curvas de poder de frenado tanto electrónico como nuclear de iones de F 20 MeV en LiTaO_3 se muestran en la Figura 7.1. Como se puede observar, estas curvas son similares a las del caso de las irradiaciones con F 25 MeV a 45° de incidencia, representadas en la Figura 7.2.

En la Figura 7.7 se representan los índices efectivos de los modos guiados y los correspondientes perfiles de índice de refracción de las guías de onda ópticas fabricadas en CLT con iones de F 20 MeV a 5° . También se representa el caso de una de las guías de onda fabricadas en SLT, presentadas en el apartado anterior, como referencia. De nuevo, se muestran también los índices de refracción tanto del CLT virgen, $n_{o,s}$, como del material amorfo, n_a , además de indicarse las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear, S_n , y electrónico, S_e .

Como se puede observar, para fluencias bajas, al rededor de $1e14$ iones/cm², el daño generado en el material es de nuevo proporcional a la curva de poder de frenado nuclear, como ocurría en el caso del sustrato de composición estequiométrica, presentando el máximo daño a profundidades en torno a $6,7 \mu\text{m}$.

Sin embargo, se puede apreciar una diferencia en la forma del perfil de índice de refracción con respecto al caso del SLT, siendo aquí más abrupto. Esta diferencia en la forma de los perfiles se observa también a fluencias mayores, como 6×10^{14} iones/ cm^2 . Cabe destacar que, a pesar de presentar curvas de poder de frenado similares, se han encontrado diferencias en las guías de onda ópticas generadas en las irradiaciones a 5° y 45° de incidencia. Esta cuestión se tratará específicamente en el siguiente capítulo.

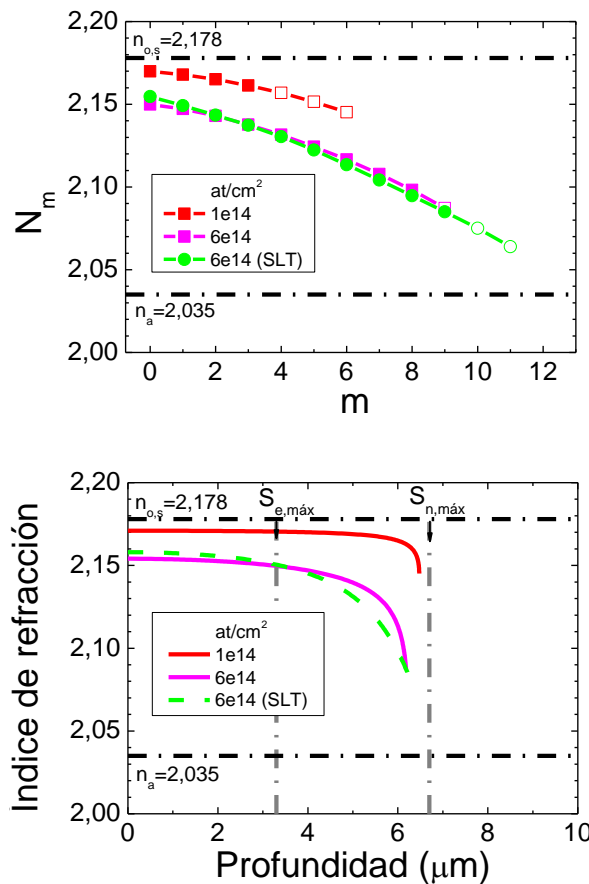


Figura 7.7. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior) de las guías de onda fabricadas en CLT con iones de F 20 MeV a 5° de incidencia. Se representa también el caso de una guía de onda fabricada en SLT como referencia. Además, se

muestran los índices de refracción del CLT virgen, $n_{o,s}$, y amorfo, n_a , así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear, S_n , y electrónico, S_e .

Si comparamos los resultados obtenidos en SLT y CLT en las irradiaciones con flúor, se puede observar que el daño inducido por los iones es similar en ambos cristales en el rango de fluencias $1e14$ - $6e14$ iones/cm². Por esta razón, junto con el hecho de que los cristales de composición congruente resultan más asequibles, el estudio se continua a partir de aquí en cristales exclusivamente de composición congruente, CLT.

Los resultados presentados hasta ahora con iones de flúor confirman que la estimación realizada en LT según el modelo de pico térmico ha sido acertada a la hora de explorar un rango de fluencias que permite generar guías de onda ópticas con diversos perfiles de índices de refracción: desde perfiles graduales haciendo uso del daño nuclear inducido por los iones a perfiles de forma más abrupta a través del daño electrónico. Con el fin de extender el estudio para distintos de valores de poder de frenado, se han llevado a cabo diversas irradiaciones utilizando iones de carbono y de silicio, en las que el poder de frenado electrónico es menor y mayor que en el caso del flúor, respectivamente. Los resultados de estas irradiaciones se exprondrán a continuación.

7.3. Guías de onda ópticas fabricadas en LiTaO₃ con iones de carbono

Como se comentaba en el apartado 3.2.3, no son demasiados los resultados publicados sobre guías de onda ópticas generadas en LiTaO₃ en irradiaciones con iones pesados, e incluso algunos trabajos no parecen claros. En concreto, en 2014 se publicó un artículo [97] que indica que se pueden obtener guías de onda ópticas en LiTaO₃ a través del daño electrónico inducido por iones de C a 15 MeV, con fluencias en torno a $2e14$ iones/cm². Estos resultados, además de entrar en contradicción con algunos publicados anteriormente [96], no son consistentes con los resultados presentados a lo largo de esta tesis.

Con la intención de contrastar esta información, además de ampliar el estudio sobre guías de onda ópticas en LT aquí presentado, también se han llevado a cabo irradiaciones con iones de C a 15 MeV. Las curvas de poder de frenado nuclear y

electrónico para iones de C 15 MeV a incidencia normal en LT se muestran en la Figura 7.8.

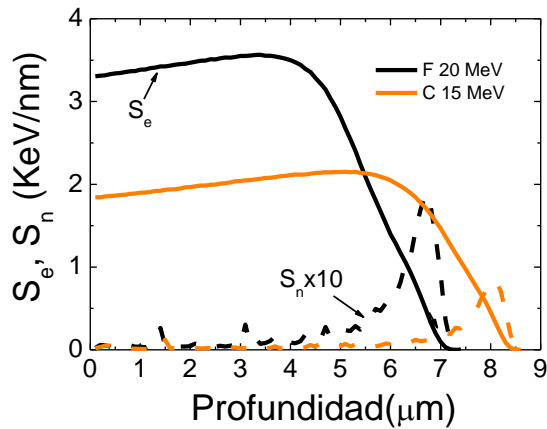


Figura 7.8. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea de puntos) para iones de C 15 MeV en LT, a 5° de incidencia. La curva S_n se ha multiplicado por 10 para facilitar la vista.

En la Figura 7.9 se muestra el perfil de índice de refracción de la guía de onda fabricada en LT con C 15 MeV y 2×10^{14} iones/ cm^2 , extraída de la referencia [97]. Como se puede observar, el perfil de índice de refracción alcanza su valor mínimo a la profundidad que coincide con el máximo en la curva de poder de frenado electrónico de C a 15 MeV obtenida con SRIM.

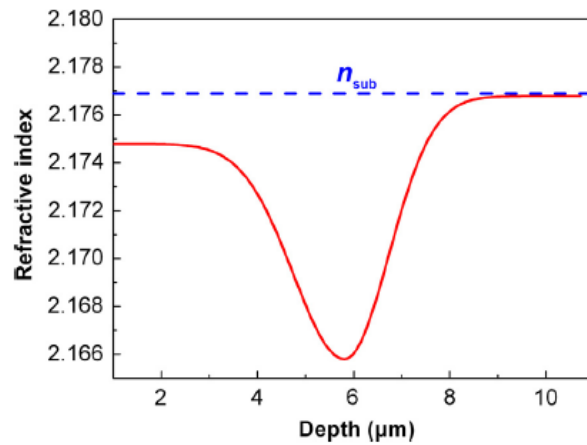


Figura 7.9. Perfil de índice de refracción de la guía de onda óptica fabricada en LT con iones de C a 15 MeV y 2×10^{14} iones/cm², extraída de la referencia [97].

En la Figura 7.10 se muestran los índices efectivos de los modos guiados y los correspondientes perfiles de índice de refracción, para la polarización ordinaria de la luz, de las guías de onda ópticas fabricadas en LT usando iones de C a 15 MeV.

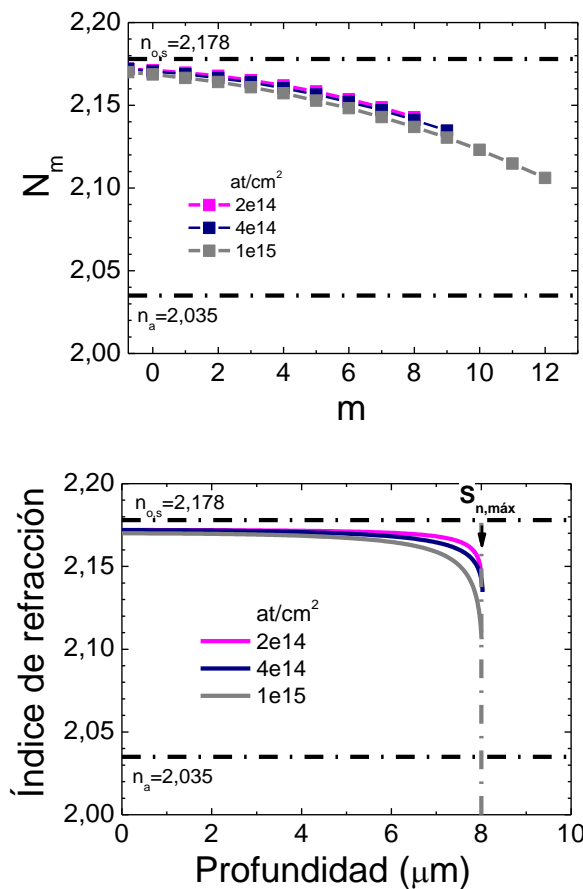


Figura 7.10. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior) de las guías de onda fabricadas en LT con iones de C 15 MeV a 5° de incidencia. Además, se muestran los índices de refracción del LT virgen, $n_{o,s}$, y amorfo, n_a , así como la posición del máximo de poder de frenado nuclear, S_n .

En el caso de las guías de onda fabricadas en LT con irradiaciones con C 15 MeV, todas las fluencias estudiadas, desde 2×10^{14} hasta 1×10^{15} iones/cm², presentan perfiles de índice de refracción proporcionales a la curva de poder de frenado nuclear. Por tanto, las guías fabricadas en este tipo de irradiaciones son generadas únicamente a través del daño nuclear, en el rango de fluencias indicado. Además, a igualdad de fluencia, el daño presente en la muestra, indicado por la disminución del índice de refracción, es menor en este caso que el daño observado en el caso

del flúor, previamente expuesto, como cabría esperar debido a que el poder de frenado es menor en las irradiaciones con carbono.

Como se puede observar, para la fluencia más alta, $1\text{e}15$ iones/ cm^2 , el valor máximo de cambio de índice, que se encuentra a $8\text{ }\mu\text{m}$, no es mucho mayor que el 50%. Si comparamos estos resultados con la literatura, ya que nos encontramos en el mismo rango de fluencias, se puede observar que concuerdan con los publicados en la referencia [96], que hacen uso de iones de C a menor energía (6 MeV), pero estarían en contradicción con los publicados en la referencia [97] en la que, como se puede observar en la Figura 7.9, usando iones de C a la misma energía (15 MeV) a una única fluencia, $2\text{e}14$ iones/ cm^2 , el daño presentado en la guía de onda es mayor que el que aquí se expone. Además, la capa de daño se encuentra desplazada hacia menores profundidades, por lo que se asume que esta guía de onda se genera como efecto del daño electrónico inducido por los iones. Desde el punto de vista del modelo de pico térmico, una posible explicación para este fenómeno es el hecho de que, si se produce un calentamiento significativo de la muestra durante la irradiación, el umbral necesario para generar daño de carácter electrónico en el material es menor, como se comentaba en el apartado 1.3.2, por lo que el daño electrónico se haría apreciable a fluencias menores.

7.4. Guías de onda ópticas fabricadas en LiTaO_3 con iones de silicio

Para estudiar el caso de irradiaciones en las que el poder de frenado electrónico es mayor que en las irradiaciones llevadas a cabo con iones de flúor, se han utilizado iones de Si a 40 MeV para irradiar distintas muestras de LT a incidencia cuasi-normal, esto es, a 5° para evitar posibles efectos de canalización de los iones en el material. Las curvas de los poderes de frenado electrónico y nuclear de iones de Si a 40 MeV a 5° de incidencia en LT se representan en la Figura 7.11.

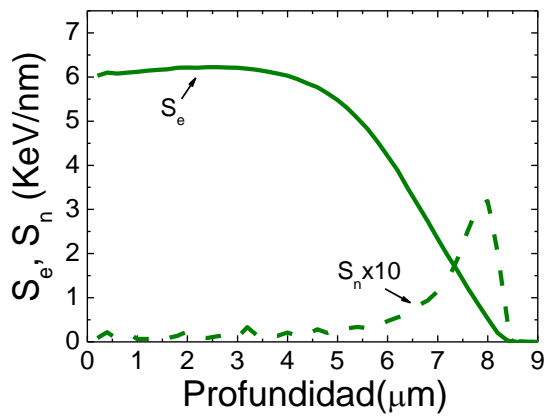


Figura 7.11. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea de puntos) para iones de Si 40 MeV a 5° de incidencia en LT.

En la Figura 7.12 se muestran las medidas de índices efectivos de los modos guiados y los correspondientes perfiles de índice de refracción de las guías de onda ópticas fabricadas en LT en irradiaciones con Si a 40 MeV, para la polarización ordinaria (7.12a) y extraordinaria (7.12b) de la luz.

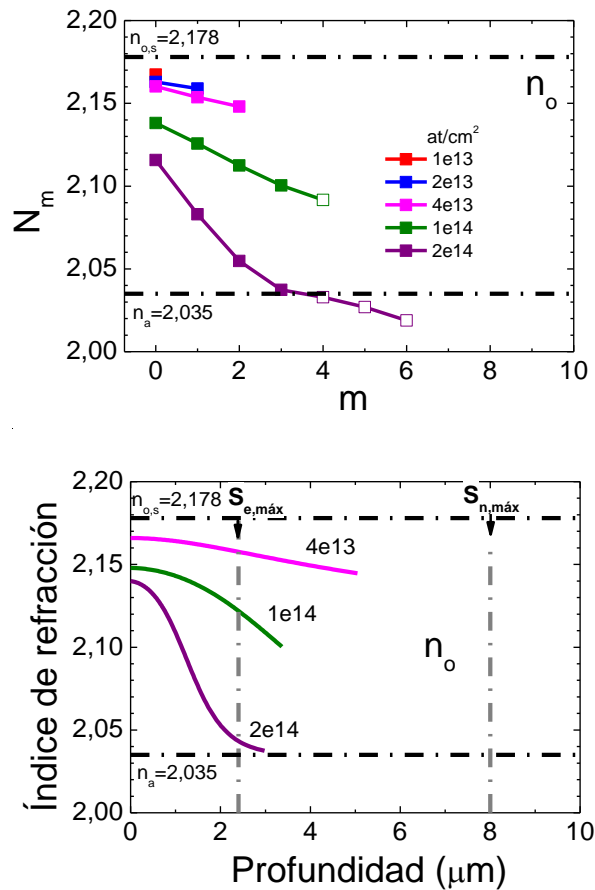


Figura 7.12a. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior) de las guías de onda fabricadas en LT con iones de Si 40 MeV a 5° de incidencia, para la polarización ordinaria, n_o . También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{o,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear y electrónico, S_n y S_e respectivamente.

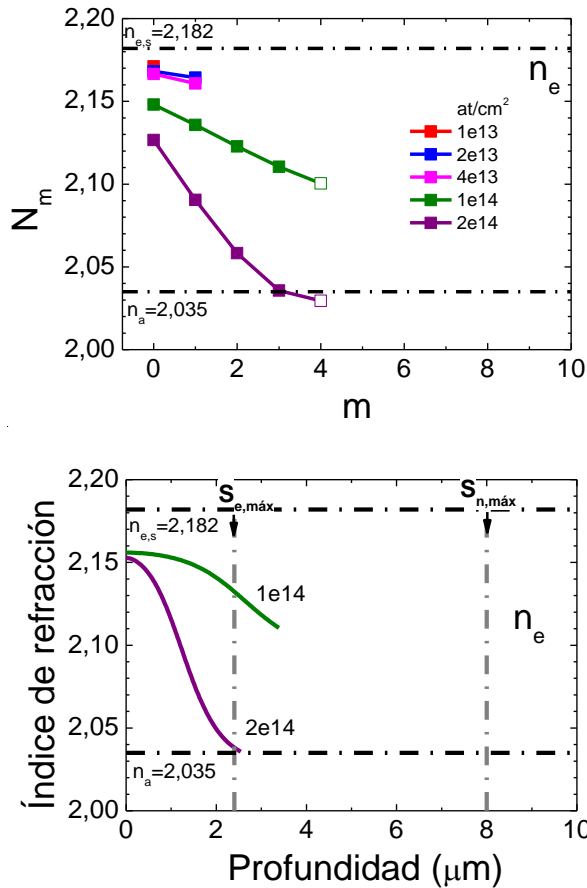


Figura 7.12b. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior) de las guías de onda fabricadas en LT con iones de Si 40 MeV a 5° de incidencia, para la polarización extraordinaria, n_e . También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{e,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear y electrónico, S_n y S_e respectivamente.

Para las fluencias más bajas, en las que se pudieron medir solo uno o dos modos, estos no resultan suficientes para poder reconstruir un perfil de índice de refracción fiable, aunque de la pendiente marcada por los valores experimentales de los índices efectivos se puede obtener una estimación de la forma que tendrá dicho perfil. De la tendencia marcada por estas estimaciones y el perfil obtenido para la fluencia 4e13 iones/cm², podemos observar que la profundidad a la que

aparece el máximo daño está ligeramente desplazada con respecto a la posición del máximo nuclear, lo cual indica que el daño electrónico no puede despreciarse frente al daño nuclear, como ocurría en los casos de las guías de onda ópticas fabricadas con iones de carbono y con iones de flúor en las fluencias más bajas. Como se puede observar, a medida que se incrementa la fluencia de irradiación los efectos del daño electrónico se hacen cada vez más evidentes, llegando a sobre el daño nuclear para fluencias lo suficientemente altas. Para la fluencia 2×10^{14} iones/cm², la posición del máximo daño coincide exactamente con la profundidad del máximo de daño electrónico predicho por SRIM, a $2,4 \mu\text{m}$, donde el índice de refracción ha disminuido hasta el valor del material amorfo. En el caso de las irradiaciones con Si, las consecuencias del daño electrónico en el material son apreciables para fluencias bastante menores, aproximadamente de un orden de magnitud, que en el caso del F, lo cual es consistente con el hecho de que el poder de frenado electrónico en LT es mayor para los iones de Si que para los de F.

De nuevo, con el fin de caracterizar el desorden inducido por los iones de Si en las muestras de LT, se han analizado estas guías de onda a través de la técnica de RBS-c con iones de H a 3 MeV. Los espectros obtenidos se muestran en la Figura 7.13 en función de la profundidad de la muestra, junto con los espectros de una muestra virgen en configuración *random* y canalizada como referencia.

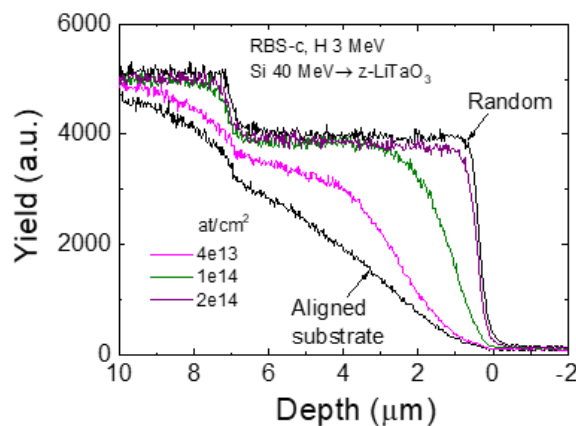


Figura 7.4. Espectros de RBS-c usando H 3 MeV en las guías de onda fabricadas en LT con iones de Si 40 MeV a 5° de incidencia. Los espectros de una muestra virgen también se representan, tanto en configuración *random* como canalizada.

Como puede observarse, para la menor de las fluencias, 4×10^{13} iones/cm², el daño presente en la muestra es ya significativo, y cuando aumentamos la fluencia de irradiación el daño crece rápidamente hasta obtener una configuración cercana a la configuración *random* para la fluencia 2×10^{14} iones/cm², lo cual indica que se ha alcanzado la amorfización del material.

Si comparamos estos resultados con los obtenidos utilizando iones de flúor, en las irradiaciones de silicio las guías generadas a bajas fluencias, en torno a 4×10^{13} iones/cm², no son de carácter puramente nuclear sino que los efectos del daño electrónico son ya apreciables. A fluencias moderadas, las guías de onda ópticas generadas son resultado principalmente del daño electrónico inducido por los iones, obteniendo un perfil de tipo escalón y alto salto de índice a fluencias alrededor de 2×10^{14} iones/cm², esto es, aproximadamente un orden de magnitud menor que en el caso de las irradiaciones con iones de flúor.

7.5. Capa amorfa en LiTaO₃: irradiaciones con iones de bromo

Los resultados presentados hasta ahora se centran en las guías de onda ópticas generadas a través de irradiaciones en las que el poder de frenado electrónico de los iones se encuentra siempre por debajo de umbral de amorfización estimado para el LiTaO₃. Con el objetivo de estudiar un caso dentro del denominado régimen de trazas amorfas, en el que el poder de frenado electrónico se encuentra por encima del umbral de amorfización del material, se han llevado a cabo distintas irradiaciones con iones de Br a 40 MeV tanto en LT como en LN, a 5° de incidencia para evitar los posibles efectos de canalización de los iones en las muestras. En la Figura 7.14 se representan las curvas de los poderes de frenado electrónico y nuclear para los iones de Br a 40 MeV en LT y LN. También, se muestra un esquema de las trazas amorfas que se obtienen mediante dichas irradiaciones en ambos materiales, teniendo en cuenta sus umbrales de amorfización.

La irradiación con iones de Br a 40 MeV a bajas fluencias, esto es, por debajo de 1×10^{12} iones/cm², en las que los impactos de los iones son aislados, genera en este tipo de materiales trazas amorfas de tamaño nanométrico con una longitud de

varios micrómetros. A fluencias más altas, por encima de $1\text{e}13$ iones/ cm^2 , se produce el solapamiento completo de dichas trazas y se genera una capa amorfa homogénea cuyo espesor crece con la fluencia de irradiación. De esta forma, se puede estimar tanto del espesor como del índice de refracción de la capa amorfa a través de la técnica de acoplo por prisma en su versión para la medida de resonancias, expuesta en el apartado 5.1.3.

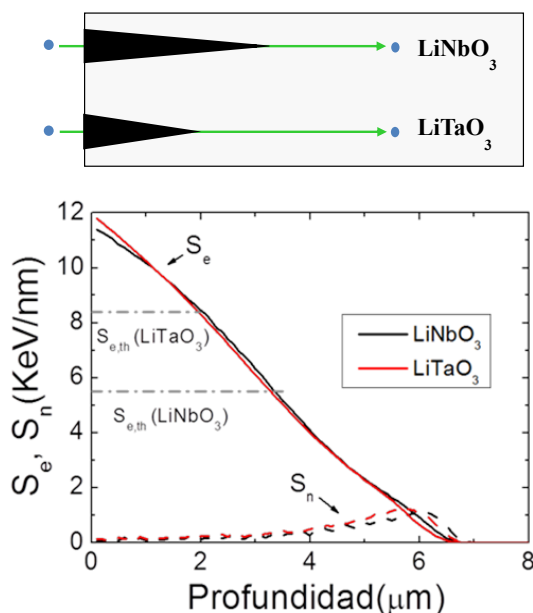


Figura 7.14. Esquema de las trazas obtenidas en LN y LT en irradiaciones con iones de Br a 40 MeV (superior). Curvas de poder de frenado electrónico, S_e , y nuclear, S_n , de iones de Br 40 MeV en LT y LN calculados con SRIM (inferior). También se indica el valor del poder de frenado electrónico umbral para la amorfización del LN como referencia.

En la Figura 7.15 se muestran los índices efectivos correspondientes a las resonancias y las reconstrucciones de los perfiles de índice de refracción de las capas amorfas generadas en LN y LT mediante la irradiación con iones de Br a 40 MeV, para la polarización ordinaria de la luz. En el caso del LN, a $1\text{e}14$ iones/ cm^2 se obtiene una capa amorfa de $5,8 \mu\text{m}$ de espesor, y un valor de 2,09 para el índice de refracción del material en su fase amorfa. Para la misma fluencia de irradiación, en el caso del LT se obtiene una capa amorfa de $4,3 \mu\text{m}$ de espesor y un valor para el índice de refracción de 2,035. Este último valor es el que se incluye en las

gráficas de índice de refracción de las guías de onda ópticas presentadas en los apartados anteriores. Como se puede observar, el índice de refracción para el material amorfo es menor en LT que en LN, al igual que ocurre con el índice de refracción de los sustratos vírgenes de ambos materiales, puesto que el LN posee un índice de refracción mayor que LT, tanto en la polarización ordinaria como extraordinaria. El espesor de la capa amorfa también es menor en el caso del LT, comparado con LN, lo cual indica la diferencia en los umbrales de amorfización de los dos materiales, siendo el LT más alto puesto que muestra una mayor resistencia al daño generado por iones de Br 40 MeV a $1\text{e}14$ iones/ cm^2 .

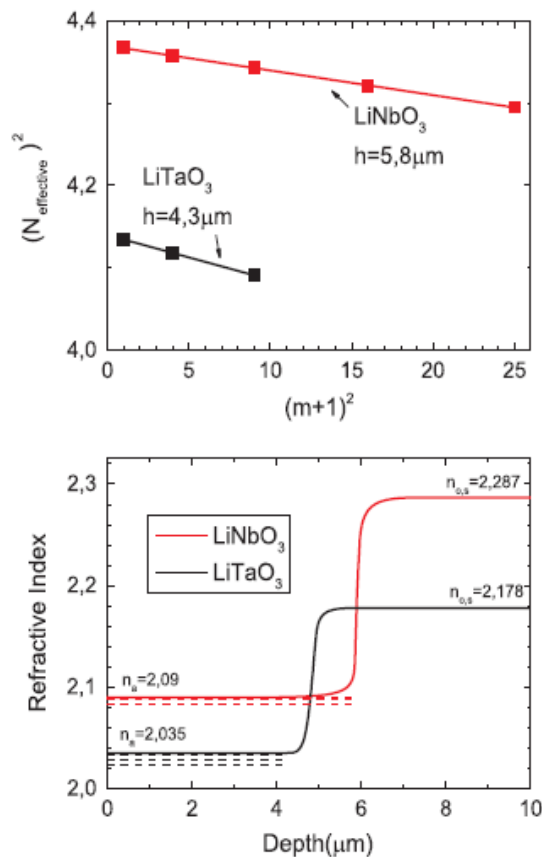


Figura 7.15. Medida experimental de los índices efectivos de las resonancias (superior) y reconstrucción de los perfiles de índice de refracción (inferior), para la polarización ordinaria, de las capas amorfas generadas en irradiaciones con Br 40 MeV en LT y LN, con $1\text{e}14$ iones/ cm^2 . En este

último caso, también se indica el valor de las tres primeras resonancias ($m=0,1,2$) obtenidas para cada material.

Como se comentará en el siguiente apartado, la transmitancia de las muestras decrece a medida que aumenta la fluencia debido a que los defectos generados en estas irradiaciones actúan como centros de absorción. Sin embargo, cuando la fluencia es suficiente para provocar la amorfización del material, se produce una disminución en la reflectancia que provoca un incremento en la transmitancia, por lo que esta medida debe ser corregida para extraer la contribución de la absorción correspondiente a los defectos generados en el material.

La transmitancia óptica de las muestras de LT y LN irradiadas con iones de Br a 40 MeV se midió, para las distintas fluencias, en el rango 200-900 nm. Los resultados de la absorbancia obtenida de dicha medida, en tanto por ciento, se muestran en la Figura 7.16, en función de la longitud de onda. Como se puede observar, en las muestras irradiadas aparecen anchas bandas de absorción, tanto en LT como en LN. El nivel de absorción presente en LN es de aproximadamente un orden de magnitud mayor que en el caso de LT, en el que para la menor de las fluencias, 5×10^{12} iones/cm², ni siquiera hay una absorción apreciable. Teniendo en cuenta la similitud entre las estructuras intrínsecas de ambos materiales, estos resultados indican que en el LT la densidad de defectos generada es menor que en el LN, en las mismas condiciones de irradiación.

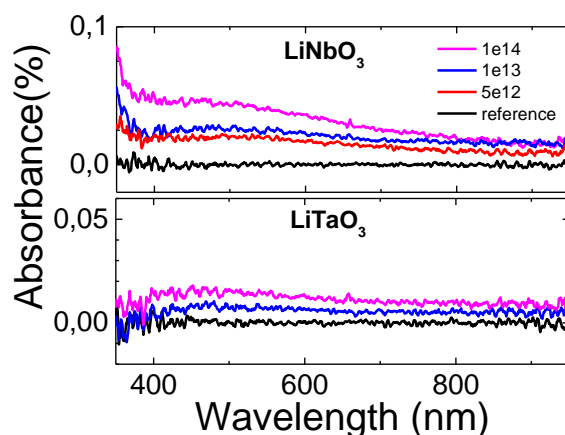


Figura 7.16. Absorbancia de las muestras de LN (superior) y LT (inferior) irradiadas con Br 40 MeV a distintas fluencias. También se incluye el espectro de una muestra virgen como referencia, que coincide con una absorción del 0%.

De nuevo, estos resultados, siguiendo la tendencia de todos los resultados presentados anteriormente, permiten concluir que el umbral de amorfización es superior en el caso del LT que en el del LN, ya que como norma general y a igualdad de poder de frenado y fluencia de irradiación, los iones generan un daño que es mayor en el caso del LN que en LT.

7.6. Pérdidas de propagación óptica

Las guías de onda ópticas generadas a través de la irradiación con iones presentan altas pérdidas de propagación recién fabricadas, principalmente debido a los centros de color que se forman en dichas irradiaciones. Estos defectos inducidos en el material actúan como centros de absorción, además de los posibles defectos que pueda contener el material, que actúan como centros de dispersión de la luz, o *scattering*, como consecuencia del estrés local en determinadas regiones. Con el objetivo de reducir los centros de color, se han llevado a cabo distintos tratamientos térmicos, basados en calentar la muestra en atmósfera de aire a 175°, 200° y 225° durante una hora. A continuación, se presentan los resultados obtenidos de las pérdidas de propagación óptica de las guías de onda ópticas

fabricadas en LiTaO_3 (de composición congruente) a través de irradiaciones con iones de flúor y de silicio, obtenidas a continuación de cada tratamiento térmico.

7.6.1. Guías de onda ópticas en LiTaO_3 fabricadas con iones de flúor

Como se comentaba anteriormente, a través de la irradiación con iones de flúor y de la fluencia alcanzada, se pueden generar guías de onda ópticas en LT debido tanto a las interacciones nucleares como electrónicas entre los iones y los átomos del material, dando lugar a guías de onda con distinto perfil de índice de refracción.

Con el objetivo de estudiar las guías de onda ópticas de carácter nuclear generadas en LT, se ha elegido una guía de onda de 6×10^{14} iones/ cm^2 fabricada con F 20 MeV a 5° y se ha sometido a los distintos tratamientos térmicos, a 175° , 200° y 225° , de una hora de duración. En la Figura 7.17 se representan las medidas de índices efectivos y los correspondientes perfiles de índice de refracción, para la polarización ordinaria, de dicha guía de onda, antes y después de los tratamientos térmicos a los que fue sometida antes de medir las pérdidas de propagación ópticas.

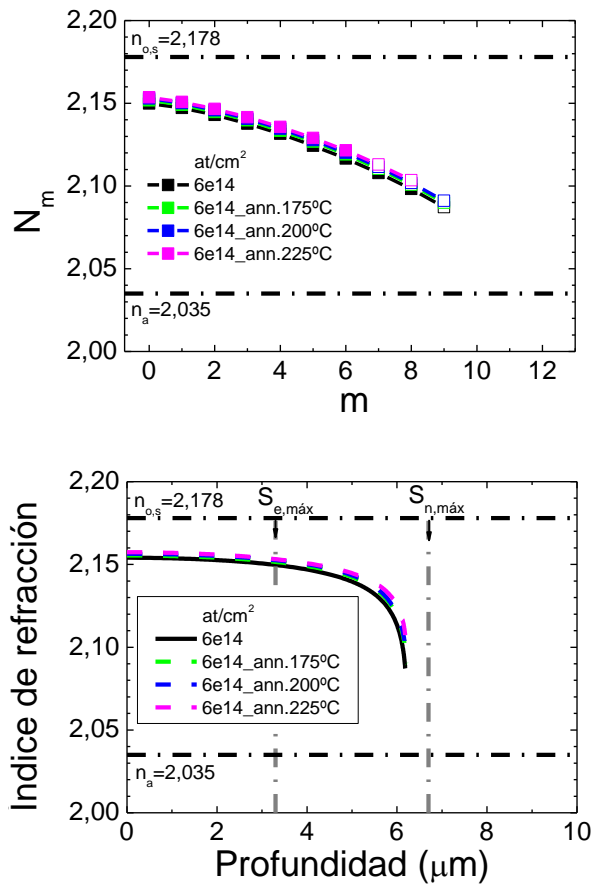


Figura 7.17. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior) de la guía de onda fabricada en LT con $2e14$ iones/cm² de F 20 MeV a 5° de incidencia después de la irradiación (línea continua) y después de cada tratamiento térmico a la cual se la ha sometido (línea de puntos), para la polarización ordinaria, n_o . También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{o,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear y electrónico, S_n y S_e respectivamente.

En la Figura 7.18 se muestran los espectros de la transmitancia que presenta esta guía de onda óptica después de la irradiación, así como los espectros de transmitancia después de cada tratamiento térmico indicado, todos ellos referenciados a una muestra de LT virgen.

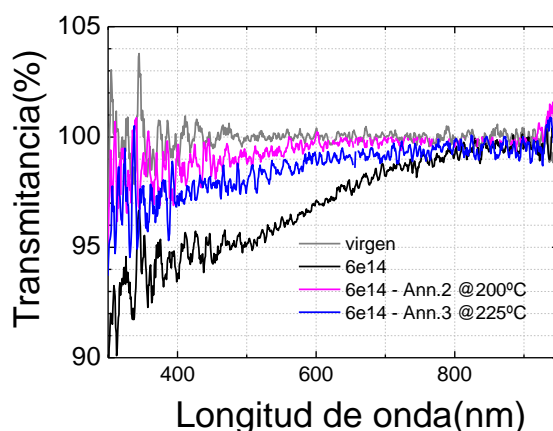


Figura 7.18 Espectros de transmitancia, en función de la longitud de onda, de la guía de onda óptica fabricada con F a 20 MeV y $6e14$ iones/ cm^2 en LT después de cada tratamiento térmico.

Como se puede observar, la irradiación produce que la transmitancia de la muestra decaiga a un 97% del valor de transmitancia de una muestra virgen (a 633 nm), como consecuencia de los centros de color que en ella se generan. Al calentar la guía de onda, a partir de 100°C comienza la recuperación de estos defectos y por lo tanto, la transmitancia que presenta la muestra irradiada aumenta. La mayor recuperación observada se produce a 225°C, donde la transmitancia se acerca a la de la muestra de LT virgen pero sin llegar a alcanzar la recuperación total. De esta manera, se mantiene una mínima absorción inducida en el material a través de la irradiación con iones de flúor que no se ha conseguido recuperar utilizando los tratamientos térmicos señalados.

En la Figura 7.19 se muestra la imagen de esta guía de onda óptica con el primer modo propagándose para la polarización ordinaria de la luz, a 633 nm, y el correspondiente análisis de pérdidas de propagación después de someterla al último tratamiento térmico, de 225°C. A esta temperatura es en la que las guías de onda de carácter nuclear presentan su mejor valor de pérdidas de propagación ópticas, en torno a 0,8 dB/cm, conservando una buena calidad en la muestra para su posterior análisis. Cabe destacar que estos valores se encuentran dentro del rango que se considera competitivo en el campo de las guías de onda para su uso en dispositivos ópticos.

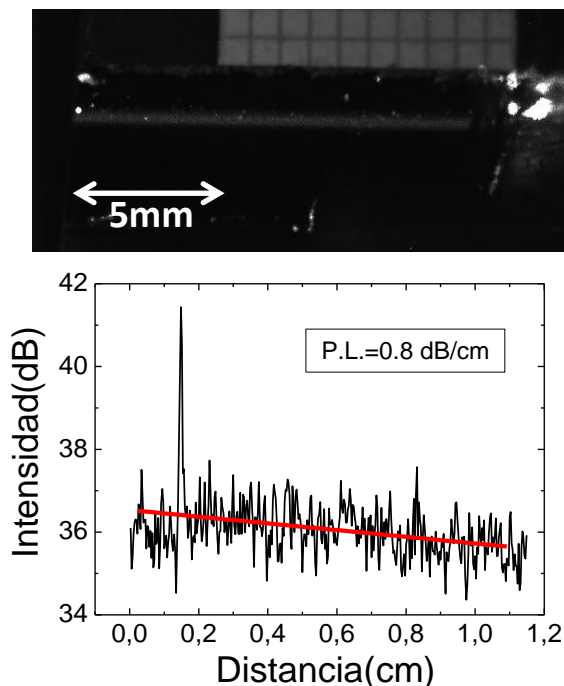


Figura 7.19 Imagen del primer modo propagándose por la guía de onda fabricada en LT con 6×10^{14} iones/ cm^2 de F 20 MeV a 5° de incidencia (superior) y el correspondiente análisis de la curva de intensidad en función de la distancia (inferior). También se representa el valor de las pérdidas de propagación ópticas obtenidas de la pendiente de la recta de ajuste.

Por otro lado, en el caso de las guías de onda ópticas de carácter electrónico, se han llevado a cabo los mismos tratamientos térmicos en distintas guías con un amplio rango de fluencias, con el fin de eliminar los centros de color generados durante la irradiación. Sin embargo, en este tipo de guías no se han conseguido pérdidas de propagación ópticas tan bajas como en el caso de las guías de onda generadas a través de interacciones nucleares, estando todos los valores obtenidos por encima de 1,5 dB/cm para las guías de onda de carácter electrónico. Sorprendentemente, se ha encontrado que en las guías que presentan un perfil de índice de refracción producido a partir del daño electrónico, los tratamientos térmicos por encima de los 200°C empeoran los resultados, aumentando las pérdidas de propagación óptica, ya que este proceso puede incluso generar grietas a lo largo de toda la muestra (Fig. 7.20).

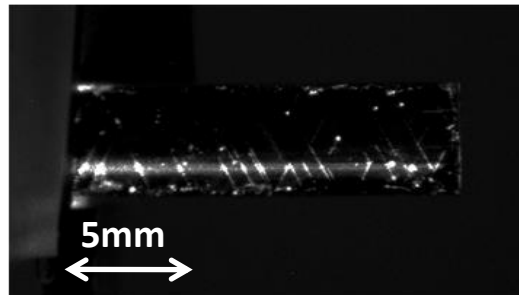


Figura 7.20. Imagen del primer modo propagándose por una guía de 2×10^{15} iones/ cm^2 fabricada en LT con F 25 MeV a 45° de incidencia.

Este efecto es probablemente debido a los procesos de relajación que ocurren al calentar un material con estrés y tensiones acumuladas, que en el caso de LT son más significativos que en LN, puesto que no se ha observado en las guías de onda ópticas fabricadas con flúor en LN [25,91].

En la Figura 7.21 se muestran distintas imágenes de una de estas guías de onda vista a través del microscopio (óptico). Como se puede observar, existen grietas a lo largo de toda la muestra producidas después de ser irradiada con iones de flúor y ser sometida a distintos tratamientos térmicos.

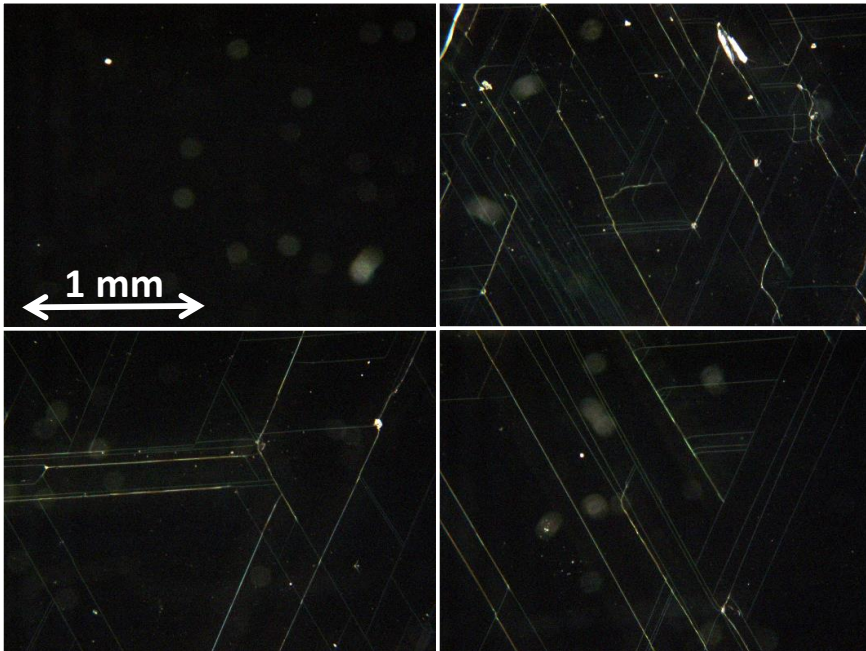


Figura 7.21. Imágenes de una guía de onda óptica, fabricada con iones de flúor, agrietada después someterla a distintos tratamientos térmicos.

Estos resultados se han podido observar en todas las guías de onda ópticas en LT que presentan un perfil de índice de refracción proporcional al daño electrónico inducido en irradiaciones con iones de flúor, después de someter a las muestras a distintos tratamientos térmicos en el rango de temperaturas de 150 a 350°C. En este sentido, las tensiones acumuladas en el material a través de la irradiación con iones serían las responsables de este agrietamiento de las muestras, que depende tanto de la fluencia de irradiación como de la temperatura de los tratamientos térmicos. Este comportamiento se ha observado también en implantaciones con iones de He en LT [131].

7.6.2. Guías de onda ópticas en LiTaO₃ fabricadas con iones de silicio

Para evaluar las pérdidas de propagación ópticas en las guías de onda generadas en LT a través de irradiaciones con iones de Si, se han utilizado dos guías de 4e13 y 8e13 iones/cm², fabricadas a 5° de incidencia para evitar los posibles efectos de canalización. En la Figura 7.22 se muestran las medidas de índices efectivos de los modos guiados y los correspondientes perfiles de índice de refracción, para la polarización ordinaria, de las guías de onda ópticas fabricadas en LT con Si 40 MeV, con las dos fluencias mencionadas.

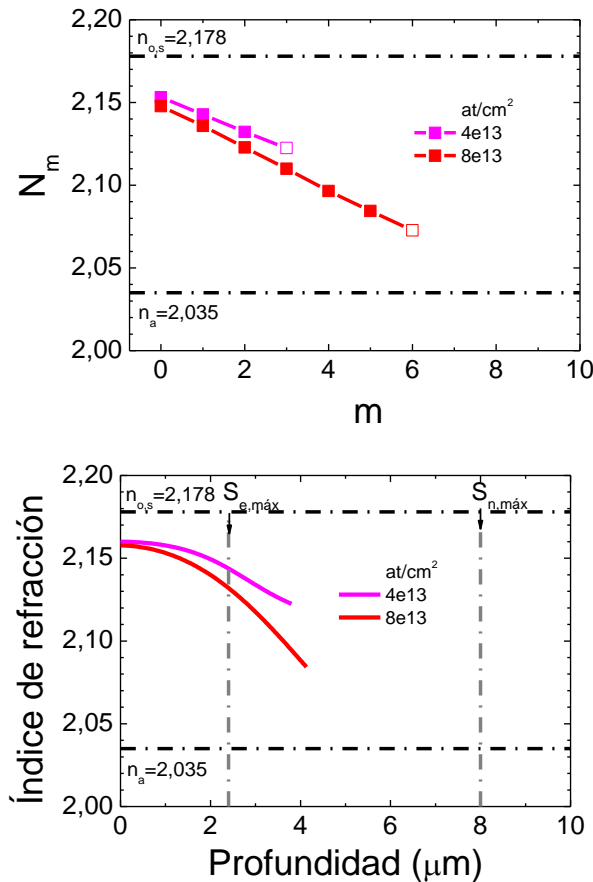


Figura 7.22. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior), para la polarización ordinaria, de las guías de onda fabricada en LT con Si 40

MeV a 5° de incidencia. También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{o,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear, S_n , y electrónico, S_e .

En la Figura 7.23 se muestran los espectros de la transmitancia que presentan estas guías de onda ópticas después de la irradiación, así como los espectros de transmitancia después de cada tratamiento térmico indicado, todos ellos referenciados a una muestra de LT virgen.

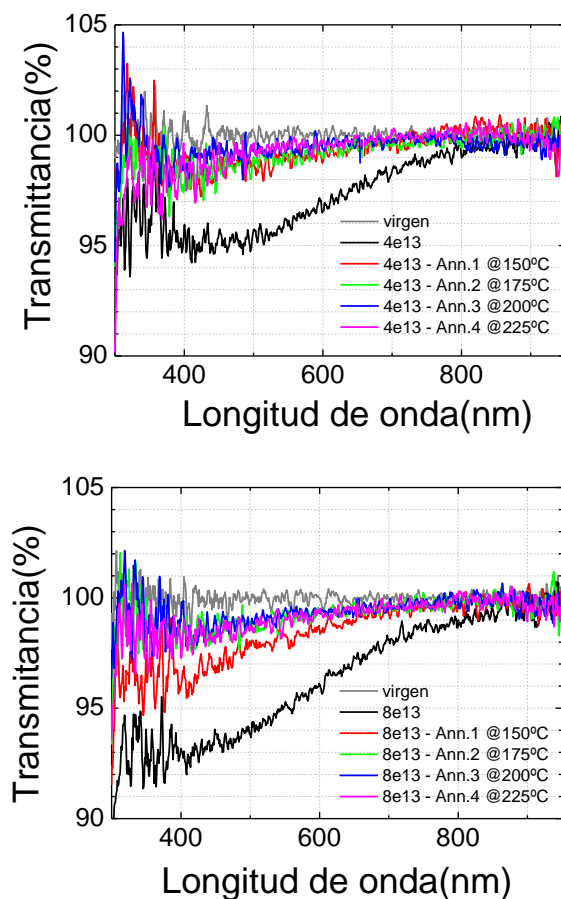


Figura 7.23. Espectros de transmitancia, en función de la longitud de onda, de las guías de onda ópticas fabricadas con Si a 40 MeV, de fluencias $4e13$ (superior) y $8e13$ iones/cm² (inferior) en LT, después de cada tratamiento térmico.

Como se puede observar, la irradiación con iones de Si también produce que la transmitancia de la muestra decaiga con respecto a la transmitancia de una muestra virgen, como consecuencia de los centros de color que en ella se generan. Al calentar las muestras, se produce el proceso de recuperación de estos defectos y por lo tanto, la transmitancia de la muestra irradiada aumenta. De nuevo, como en el caso de las guías de onda fabricadas con iones de flúor, la mayor recuperación observada se produce a 225°C , donde la transmitancia se acerca a la de la muestra de LT virgen pero sin llegar a alcanzar la recuperación total, manteniendo un nivel de absorción inducida en el material a través de la irradiación con iones.

En la Figura 7.24 se muestra la imagen del primer modo propagándose, para la polarización ordinaria de la luz y a 633 nm , de la guía de onda óptica fabricada con iones de Si a 40 MeV con $4\text{e}13\text{ iones/cm}^2$, y su correspondiente análisis de pérdidas de propagación ópticas después de someterla al último tratamiento térmico, de 225°C . A esta temperatura se obtienen los mejores valores de pérdidas de propagación ópticas para las guías de onda fabricadas en LT con iones de Si, que están en torno a $0,6\text{ dB/cm}$.

En el caso de la guía de onda óptica, fabricada con Si a 40 MeV , de $8\text{e}13\text{ iones/cm}^2$, se obtienen unos resultados de pérdidas de propagación óptica mayores que en el caso de la fluencia más baja, $4\text{e}13\text{ iones/cm}^2$. De nuevo, como en las guías de onda generadas mediante iones de flúor presentadas anteriormente, el aumento de fluencia puede significar el deterioro de la calidad de la guía, provocando que las pérdidas de propagación ópticas se incrementen.

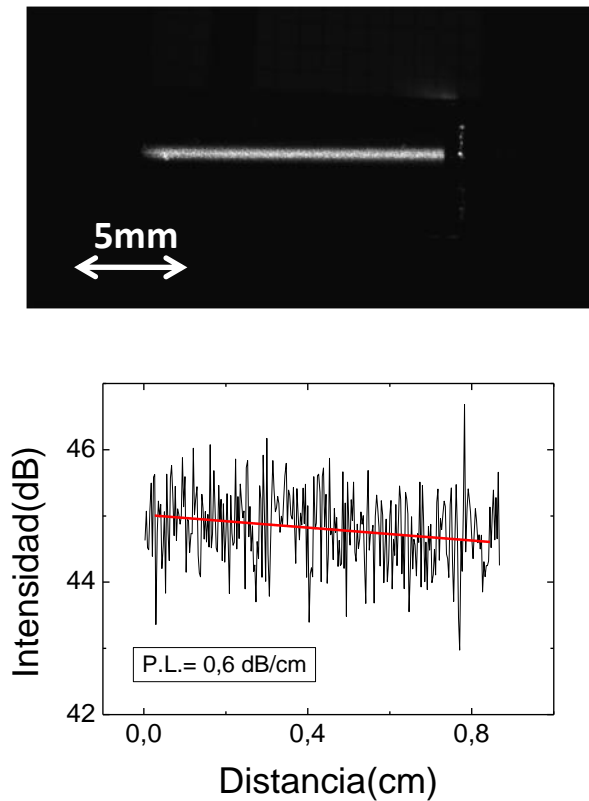


Figura 7.24. Imagen del primer modo propagándose por la guía de onda fabricada en LT con Si 40 MeV a 5º de incidencia y $4e13$ iones/cm² (superior) y el correspondiente análisis de la curva de intensidad en función de la distancia (inferior). También se indica el valor de las pérdidas de propagación ópticas obtenidas de la pendiente de la recta de ajuste

Los resultados del análisis de pérdidas de propagación ópticas de las guías de onda fabricadas en LT con iones de F y Si aquí presentadas se muestran en la Figura 7.25 en función de la temperatura de los distintos tratamientos térmicos a los cuales fueron sometidas.

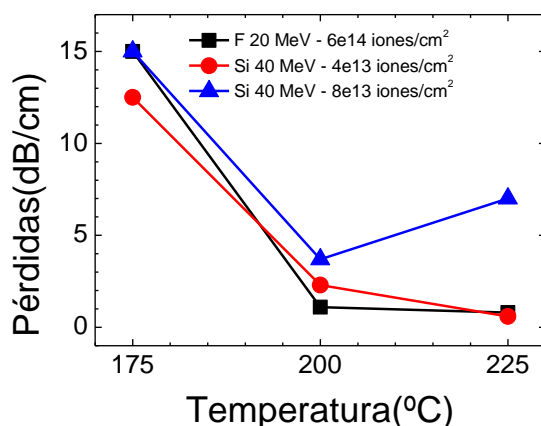


Figura 7.25. Pérdidas de propagación óptica, para la polarización ordinaria a 633 nm, frente a la temperatura de annealing de algunas de las guías fabricadas en LT mediante irradiaciones con iones de flúor y de silicio.

Como se puede observar, en las guías de onda ópticas fabricadas en LT con iones de Si se obtienen unos resultados muy similares a los de las guías de onda fabricadas con F. Para la menor de las fluencias, $4e13$ iones/cm², las pérdidas de propagación óptica son también menores que 1 dB/cm, por lo que se puede considerar un buen resultado. Si doblamos dicha fluencia, $8e13$ iones/cm², nos encontramos con que, aunque el perfil de índice de refracción no es el de una guía generada estrictamente a partir del daño electrónico, la temperatura mejora la calidad de la guía de onda en los primeros tratamientos pero, a partir de 200°C, calentar la muestra empeora la calidad de la guía significativamente. Estos resultados son similares a los obtenidos en las guías de onda fabricadas con iones flúor. Por lo tanto, estos datos sugieren una relación entre la cantidad de daño (desorden estructural) inducido en el material y la respuesta del mismo a la temperatura. Una vez superado cierto umbral de daño, aumentar la temperatura de la muestra provoca relajaciones en las tensiones generadas en el material, produciendo un daño adicional y empeorando la calidad de la guía de onda óptica generada.

En la Tabla 7.2 se muestra un resumen de los resultados obtenidos para las guías de onda ópticas en LT aquí presentadas.

Ion y energía	Fluencia (iones/cm ²)	Espesor de la guía de onda (μm)	Espesor de la capa amorfa (μm)	Pérdidas de propagación óptica (dB/cm)
F 20 MeV	6e14	6,2	0,3	0,8
F 25 MeV (45°)	2e15	2,9	3	>10
Si 40 MeV	4e13	6,8	1,2	0,6
Si 40 MeV	8e13	4,1	3,9	7

Tabla 7.1. Resumen de los resultados obtenidos en las guías de onda fabricadas en LT con los datos especificados en las dos primeras columnas. Se incluye también la medida de los espesores de la capa de guiado y la capa amorfa en cada caso, además de las pérdidas de propagación óptica obtenidas después del último tratamiento térmico (a 225°C).

Cabe destacar algunos trabajos sobre el daño inducido en LT por implantación de iones de Ar a baja energía (esto es, en el régimen de daño nuclear) y el estudio de la evolución del daño con los tratamientos térmicos en distintas atmósferas [130,132,133]. Por un lado, se ha comprobado la influencia del efecto de la relajación de las tensiones acumuladas del material en el desorden de la red y, por otro lado, se han demostrado los beneficios de usar una atmósfera de oxígeno húmedo en los procesos de recuperación del daño. Por esta razón, el uso este tipo de atmósferas es una clara vía de trabajo para estudios posteriores respecto a la mejora de la calidad de las guías de onda en LT fabricadas con haces de iones.

Capítulo 8. Sinergia entre los daños nuclear y electrónico en LiTaO_3

En las irradiaciones con iones, como se comentaba en la introducción, a pesar de que el daño generado en el material debido a colisiones elásticas nucleares es ampliamente comprendido, el daño debido a las excitaciones electrónicas, producidas por las colisiones inelásticas entre los iones y los átomos del material irradiado, no está todavía bien establecido aunque puede explicarse a través de modelos como el de pico térmico o modelos basados en la acumulación de los defectos inducidos por la irradiación [134,135]. Aunque ambos procesos de generación de daño, nuclear y electrónico, se asumen generalmente como independientes, existen evidencias de la sinergia entre los dos procesos en distintos materiales [136–138], incluyendo el LT [139].

En esta parte de la tesis, se exponen los resultados relativos al estudio de los efectos de la sinergia entre los daños electrónico y nuclear inducido por los iones a través de las guías de onda ópticas generadas en LiTaO_3 en irradiaciones con flúor y silicio.

8.1. Índice de refracción a través de la reflectancia in situ

En el capítulo anterior se presentaron los resultados correspondientes a las guías de onda ópticas generadas en LiTaO_3 a través de irradiaciones con iones de F 25 MeV a 45° de incidencia. Como se comentaba, en este caso ya se puede observar, a través de la medida de índices efectivos de los modos guiados y los correspondientes perfiles de índice de refracción de las guías de onda, una evolución del daño inducido por los iones de flúor, que comienza siendo de carácter nuclear para las fluencias más bajas y a medida que se incrementa la fluencia de irradiación el daño electrónico se hace cada vez más evidente, llegando a predominar frente al daño nuclear para las fluencias más altas.

A través de la técnica de medir los índices efectivos de los modos guiados se puede obtener el perfil de índice de refracción de la guía de onda óptica. Sin embargo, no se pueden obtener información más allá de la profundidad donde acaba dicha guía de onda con este método. Por esta razón, con el objetivo de investigar los cambios de índice de refracción asociados a la capa de daño nuclear en las guías de onda generadas a través del daño electrónico inducido por los iones de flúor, se decidió llevar a cabo la medida de la reflectancia in situ del LT en irradiaciones con iones de flúor a baja energía en las que el daño nuclear fuera dominante frente al electrónico y su máximo se encontrara situado en superficie. De estas medidas de reflectancia, se puede obtener una estimación de los cambios inducidos en el índice de refracción en la capa de daño nuclear, para las fluencias más bajas en las que el material no ha empezado a amorfizarse, como se detallaba en el 6.2.

Estas irradiaciones se realizaron con iones de F a 500 KeV, a 45° de incidencia con el fin de medir la reflectancia de las muestras durante su irradiación. En la Figura 8.1 se representan las curvas de los poderes de frenado nuclear y electrónico en LT de iones de F a 500 KeV y 25 MeV, a 45° de incidencia.

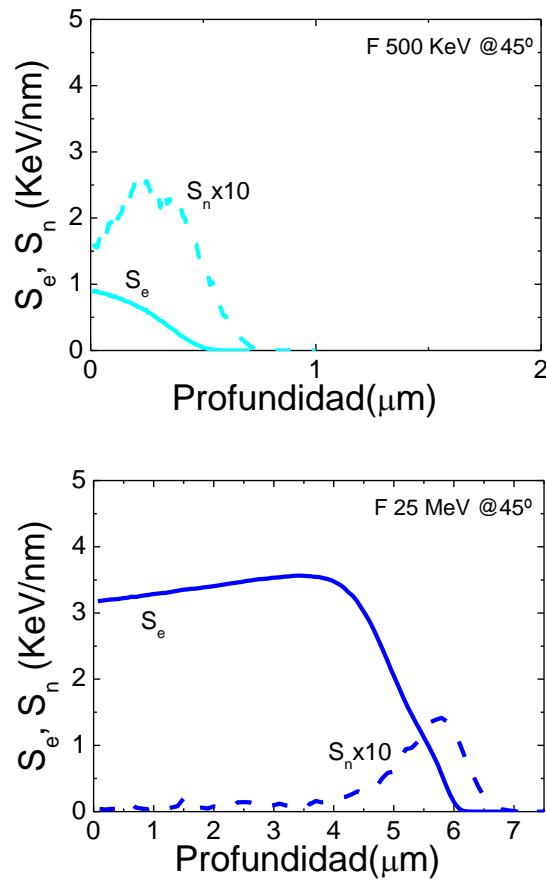


Figura 8.2. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea de puntos) de iones de F a 500 KeV (superior) y a 25 MeV (inferior), a 45° de incidencia en LiTaO_3 .

En la Figura 8.2 se muestran los espectros de reflectancia in situ obtenidos en la irradiación de LT con iones de F a 500 KeV para distintas fluencias. También se muestra el espectro de reflectancia de una muestra de LT virgen tomada como referencia y por tanto es del 100%, pero es útil para ilustrar el ruido existente en la medida de la reflectancia de las muestras. Como se puede observar, a medida que se incrementa la fluencia de irradiación la reflectancia del LT disminuye y, a partir de una determinada fluencia, se aprecia la formación de bandas en el espectro debido a la amorfización del material, inducida por la irradiación con iones.

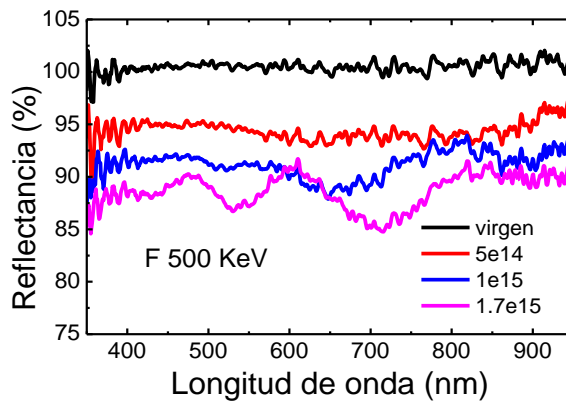


Figura 8.3 Espectros de reflectancia de LiTaO_3 irradiado con iones de F a 500 KeV y 45° de incidencia para distintas fluencias.

El resultado de estas medidas de reflectancia fueron utilizados para completar la información sobre el perfil de índice de refracción de las guías de onda ópticas fabricadas con F 25 MeV en LT. Como se comentaba en el apartado 6.2, las medidas de reflectancia se realizaron con luz no polarizada por lo que, según la configuración de los cristales utilizados, corresponde a analizar el índice de refracción ordinario de LT. En la Figura 8.3 (superior) se representa la reflectancia de la muestra en función de la fluencia de irradiación, extraído a 633 nm ya que es la longitud de onda para la que se han obtenido todos los perfiles de índice de refracción aquí presentados. De esta medida, utilizando la ecuación de Fresnel (6.3), se puede obtener la variación de índice de refracción en función de la fluencia de irradiación, como se muestra en la Figura 8.3 (inferior). También se señalan con símbolos las fluencias correspondientes a las guías de onda ópticas fabricadas con F 25 MeV.

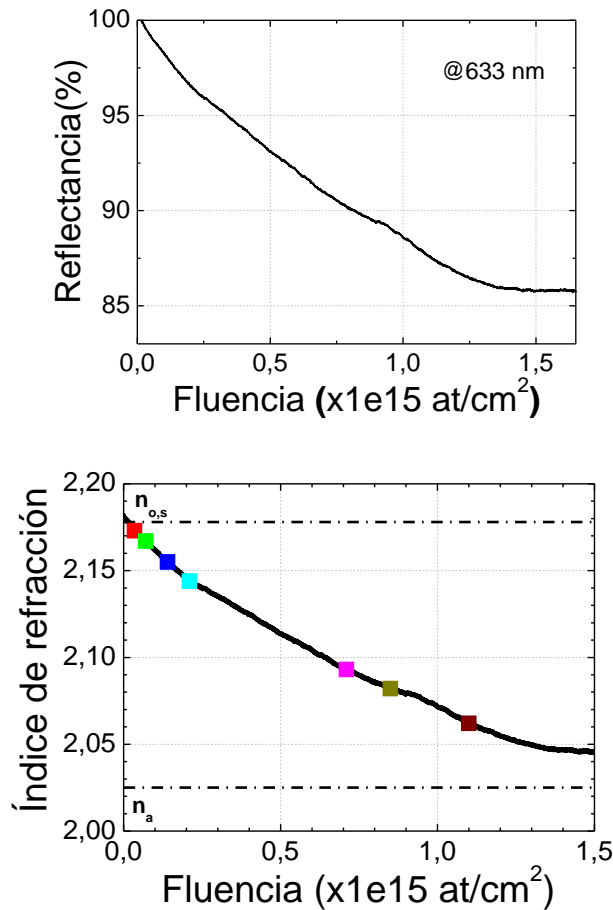


Figura 8.4 Medida de la reflectancia, a 633 nm, durante la irradiación de LiTaO_3 con F a 500 KeV en función de la fluencia (superior). Curva de índice de refracción obtenida de la medida de reflectancia en función de la fluencia (inferior). También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen, $n_{o,s}$, y al amorfo, n_a .

En la Figura 8.4 se muestran los perfiles de índice de refracción de las guías de onda fabricadas en LT con iones de F 25 a 45°, presentados en el apartado 7.2, con los valores de índice de refracción obtenidos de la medida de reflectancia para cada una de las fluencias indicadas. Las líneas continuas corresponden a la reconstrucción del perfil de índice de refracción obtenida de la medida de los índices efectivos de los modos guiados, mientras que las líneas discontinuas son

continuaciones indicativas del perfil de índice y consistentes con las curvas de poder de frenado nuclear.

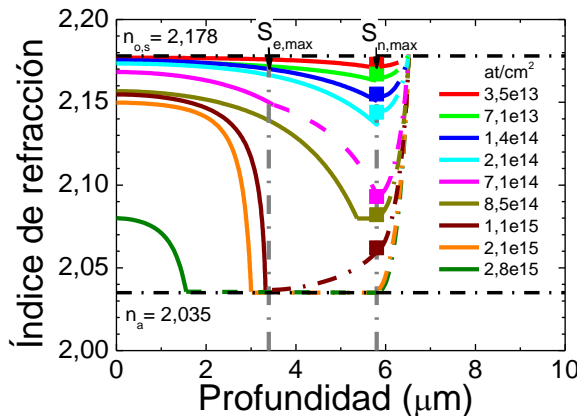


Figura 8.5. Perfiles de índice de refracción de las guías de onda fabricadas en LT con iones de F a 25 MeV a 45° de incidencia, para la polarización ordinaria. Los símbolos corresponden a los índices de la capa nuclear obtenidos a través de la medida de reflectancia in situ en irradiaciones con F a 500 KeV.

Como se puede observar, si comparamos el cambio de índice de refracción que se produce en las capas de máximo daño nuclear y máximo daño electrónico, para las fluencias más bajas el mínimo valor de índice de refracción se alcanza en la capa de daño nuclear. Sin embargo, al incrementar la fluencia de irradiación, el índice de refracción comienza lentamente a descender en la capa de daño electrónico. A partir de una determinada fluencia, en torno a $1\text{e}15$ iones/ cm^2 , el valor mínimo de índice de refracción coincide con la capa de daño electrónico, mientras que en la capa de daño nuclear se obtiene un índice de refracción mayor.

En la Figura 8.5 se muestran los valores de índice de refracción de la capa de daño nuclear, situada a $5,8\ \mu\text{m}$, obtenidos de la medida de reflectancia in situ en irradiaciones con F a 500 KeV, y de la capa de daño electrónico, a $3,6\ \mu\text{m}$, obtenida de la medida de los índices efectivos de las guías de onda irradiadas con F a 25 MeV.

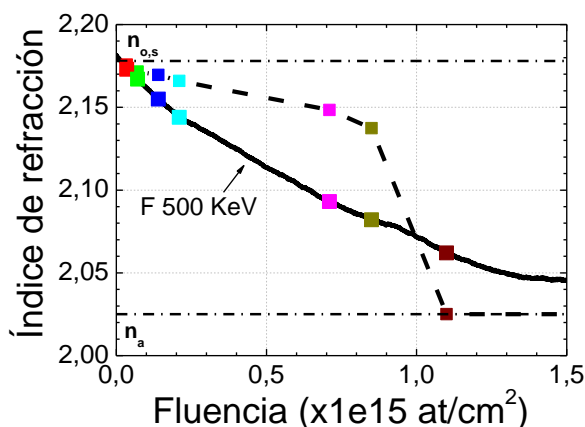


Figura 8.5. Comparación de la variación en el índice de refracción en las posiciones de la capa de daño nuclear (obtenida en las irradiaciones de F a 500 KeV, en línea continua) y electrónico (obtenida en las irradiaciones de F a 25 MeV, en línea discontinua).

De nuevo, de esta comparación se puede observar que, para las primeras fluencias en las que el daño nuclear es dominante frente al electrónico, el índice decrece de forma más rápida en la profundidad en la que el daño nuclear presenta su máximo. Sin embargo, cuando se alcanza un determinado valor en la fluencia, al rededor de $1\text{e}15$ iones/cm 2 , las dos curvas se igualan y se cruzan, de manera que la variación de índice de refracción en la posición en la que el poder de frenado electrónico es máximo supera a la de la posición donde se hace máximo el poder de frenado nuclear. De esta forma, el daño electrónico se hace cada vez más evidente y llega un punto en el que, no solo no resulta despreciable, sino que el ritmo al que se producen defectos debido a interacciones de tipo electrónico supera el ritmo al cual se generan defectos debido a interacciones nucleares. Estos resultados, que no han sido observados en el caso del LN, se asumen como la primera prueba de los efectos de sinergia entre el daño electrónico y nuclear presentes en la irradiación con iones pesados de LT.

Por otro lado, también se ha llevado a cabo el mismo procedimiento con el fin de estimar el índice de refracción en la capa de máximo daño nuclear para el caso de las guías de onda ópticas fabricadas con silicio. En la Figura 8.6 se muestran las curvas de los poderes de frenado nuclear y electrónico en LT de iones de Si a 300 KeV y 40 MeV, a 45° y 5° de incidencia, respectivamente.

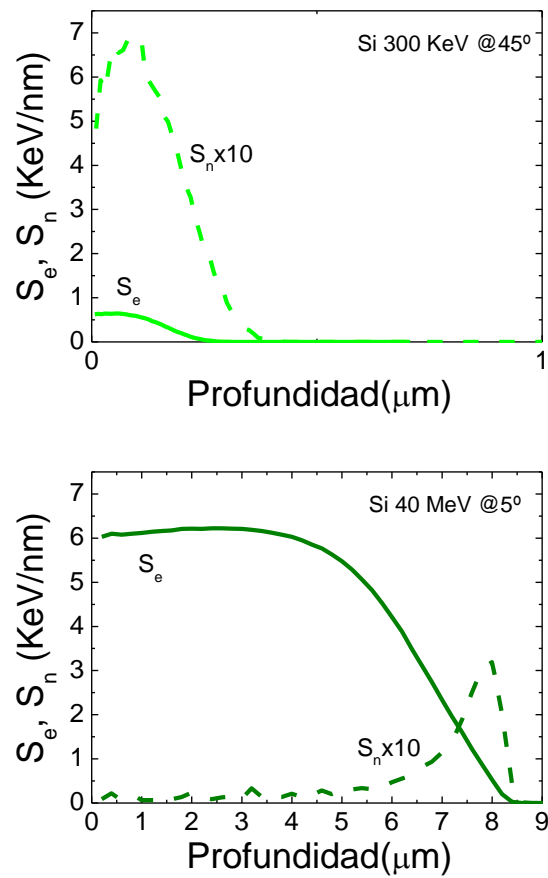


Figura 8.6. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea de puntos) de iones de Si a 300 KeV (superior) y Si a 40 MeV a 45° y 5° de incidencia, respectivamente, en LiTaO_3 (inferior).

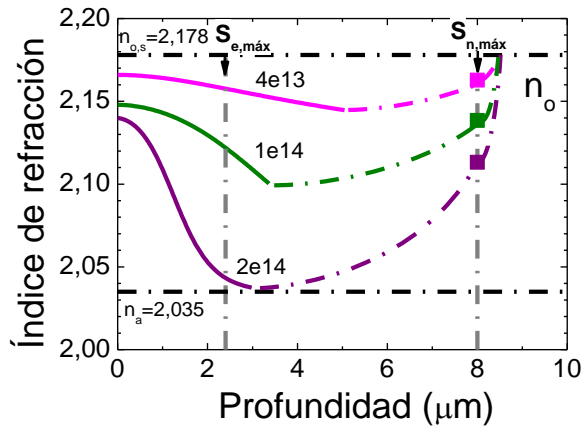


Figura 8.7. Perfiles de índice de refracción de las guías de onda fabricadas en LT con iones de Si a 40 MeV a 5° de incidencia, para la polarización ordinaria, n_o . Los símbolos corresponden a los índices de la capa nuclear obtenidos a través de la medida de reflectancia insitu en irradiaciones con Si a 300 KeV.

En la Figura 8.7 se muestran los perfiles de índice de refracción de las guías de onda fabricadas en LT con iones de Si 40, presentados en el apartado 7.4, con los valores de índice de refracción obtenidos de la medida de reflectancia para cada una de las fluencias indicadas. Las líneas continuas corresponden a la reconstrucción del perfil de índice de refracción obtenida de la medida de los índices efectivos de los modos guiados, mientras que las líneas discontinuas son continuaciones indicativas del perfil de índice y consistentes con las curvas de poder de frenado nuclear.

Como se puede observar, en el caso del silicio, para las primeras fluencias el índice de refracción ya decrece de manera más rápida en la capa de máximo daño electrónico en comparación con la capa de máximo daño nuclear. Estos resultados indican que, en esta configuración, el daño inducido por interacciones electrónicas no solo no es despreciable en las fluencias de irradiación estudiadas sino que predomina frente al daño producido por interacciones de tipo nuclear.

8.2. Efecto del ángulo de irradiación

Como se ya se comentaba en el capítulo anterior, se ha observado que la irradiación con iones de flúor a diferentes ángulos de irradiación, 5° y 45° de incidencia, resultan en distintos tipos de perfiles de índice de refracción. Con el propósito de estudiar específicamente el efecto del ángulo de irradiación en las guías de onda ópticas obtenidas en LT, se han realizado experimentos con iones de flúor y de silicio a distintos ángulos de irradiación.

En el caso de las guías de onda ópticas generadas en LT con iones de flúor, se han llevado cabo irradiaciones con F a 20 MeV a 5° y 45° de incidencia. En la Figura 8.8 se representan las curvas de poder de frenado electrónico (líneas continuas) y nuclear (líneas discontinuas) de dichas irradiaciones, en función de la profundidad en la muestra. Además, se encuentran señalados con flechas los puntos en los que las curvas de poder de frenado electrónico y nuclear se solapan. Como se puede observar, en la irradiación a 45° el solapamiento de ambas curvas se produce en valores más altos del poder de frenado en comparación con las irradiaciones a incidencia normal, además de producirse a profundidades menores que en las irradiaciones a 5° .

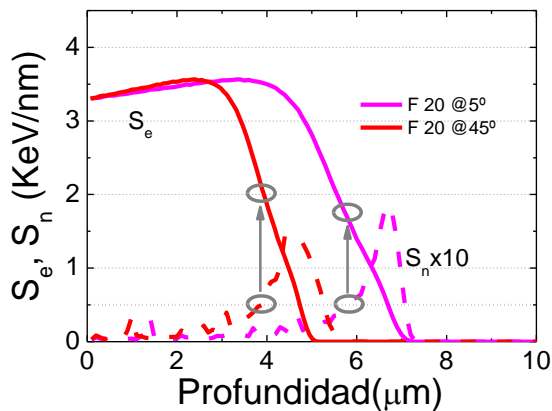


Figura 8.8. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea de puntos) para iones de F 20 MeV, a 5° y 45° de incidencia en LT.

En la Figura 8.9 se representan las medidas de índices efectivos (izquierda) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (derecha), para la polarización ordinaria, de las guías de onda fabricadas en LT con iones de F 20 MeV a incidencia cuasi-normal (línea continua) y a 45° de incidencia (línea discontinua). También se representan los índices de refracción del sustrato virgen, $n_{o,s}$, y del material amorfo, n_a , además de indicar las posiciones de los máximos de poder de frenado electrónico, S_e , y nuclear, S_n .

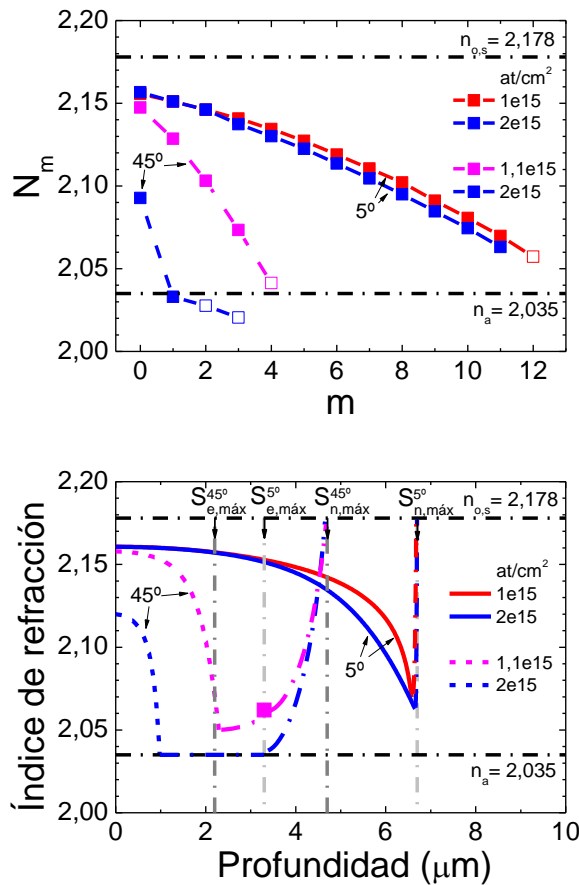


Figura 8.9. Índices efectivos (superior) y perfiles de índice de refracción (inferior), para la polarización ordinaria, de las guías fabricadas en LT con F 20 MeV a 5° (línea continua) y 45° (línea discontinua) de incidencia. También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{o,s}$) y

$n_{e,s}$) y al amorfo (n_o), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear, S_n , y electrónico, S_e .

En el caso de las irradiaciones a 5° , los perfiles de índice de refracción de $1\text{e}15$ y $2\text{e}15$ iones/ cm^2 presentan el máximo decrecimiento de índice de refracción en la posición $6,7\text{ }\mu\text{m}$, coincidiendo con la profundidad del máximo de poder de frenado nuclear estimado por SRIM. Esto indica que la capa de daño que forma la guía de onda óptica en la superficie de la muestra es generada debido principalmente a los procesos de daño de tipo nuclear inducidos por los iones. También se puede apreciar una disminución del índice de refracción a lo largo de todo el perfil, que puede asociarse al hecho de que también se produce daño de carácter electrónico, que no resulta despreciable en este rango de fluencias, a lo largo de la trayectoria de los iones. Como se puede observar, los perfiles de índice de refracción de estas dos guías de onda apenas presentan diferencias en la forma, obteniéndose prácticamente el mismo daño en ambas muestras.

En las irradiaciones con iones de flúor a 45° , usando fluencias similares que en el caso anterior, el valor mínimo de índice de refracción (prácticamente el índice de refracción del LT amorfo en ambos casos) se alcanza en la posición coincidente con la profundidad del máximo de poder de frenado electrónico, esto es, a $2,9\text{ }\mu\text{m}$ de la superficie de la muestra. Para la fluencia $1,1\text{e}15$ iones/ cm^2 , el índice de refracción en la superficie disminuye aproximadamente lo mismo que en el caso de las irradiaciones a 5° , a pesar de obtenerse una guía de onda de profundidad significativamente menor. En el caso de $2\text{e}15$ iones/ cm^2 , a 45° , se produce un drástico decrecimiento del índice de refracción en superficie con respecto a los casos descritos anteriormente, y la profundidad de la guía disminuye hasta valores de en torno a $1\text{ }\mu\text{m}$ de espesor, donde se alcanza el índice de refracción del material amorfo. La diferencia obtenida en los perfiles de índice de refracción de las guías de onda ópticas fabricadas a 45° es muy significativa en comparación con el caso de las guías de onda fabricadas a 5° de incidencia.

De esta forma, se observa que, para las irradiaciones a 45° de incidencia, se pueden obtener perfiles de índice de refracción generados a partir del daño electrónico inducido por los iones de flúor a fluencias menores que las necesarias en el caso de las irradiaciones a 5° para generar el mismo tpo de guías de onda. Estos resultados muestran que los efectos correspondientes al daño electrónico son observables de manera más rápida en irradiaciones a 45° , siendo por tanto el ángulo de irradiación un método que facilita la obtención de guías de onda ópticas generadas a través del daño electrónico, disminuyendo la fluencia de irradiación.

En las guías de onda ópticas generadas en LT con silicio, se han realizado irradiaciones con iones de Si a 40 MeV a 5° y 60° de incidencia. En la Figura 8.10 se representan las curvas de poder de frenado electrónico (líneas continuas) y nuclear (líneas discontinuas) de dichas irradiaciones, en función de la profundidad en la muestra. De nuevo, se han señalado con flechas los puntos en los que las curvas de poder de frenado electrónico y nuclear se solapan, siendo en este caso las diferencias entre los dos tipos de irradiación indicadas anteriormente más acusadas que en el caso del flúor.

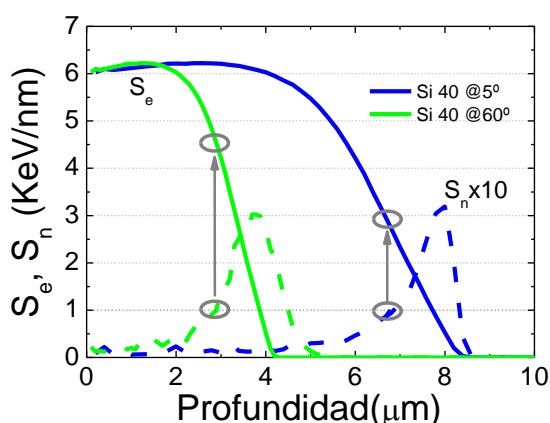


Figura 8.10. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea de puntos) para iones de Si 40 MeV, a 5° y 60° de incidencia en LT.

En la Figura 8.11 se muestran los índices efectivos de los modos guiados (izquierda) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (derecha), para la polarización ordinaria, de las guías de onda ópticas fabricadas con iones de Si 40 MeV a 5°, para evitar los efectos de canalización, y a 60° de incidencia. Los símbolos en la gráfica de perfil corresponden a la estimación del índice de refracción de la capa de daño nuclear obtenido de la medida de reflectancia in situ en irradiaciones de baja energía. También se representan los índices de refracción del sustrato virgen $n_{o,s}$, y del material amorfo, n_a , además de indicar las posiciones de los máximos de poder de frenado electrónico, S_e , y nuclear, S_n , de los iones de Si en ambas configuraciones.

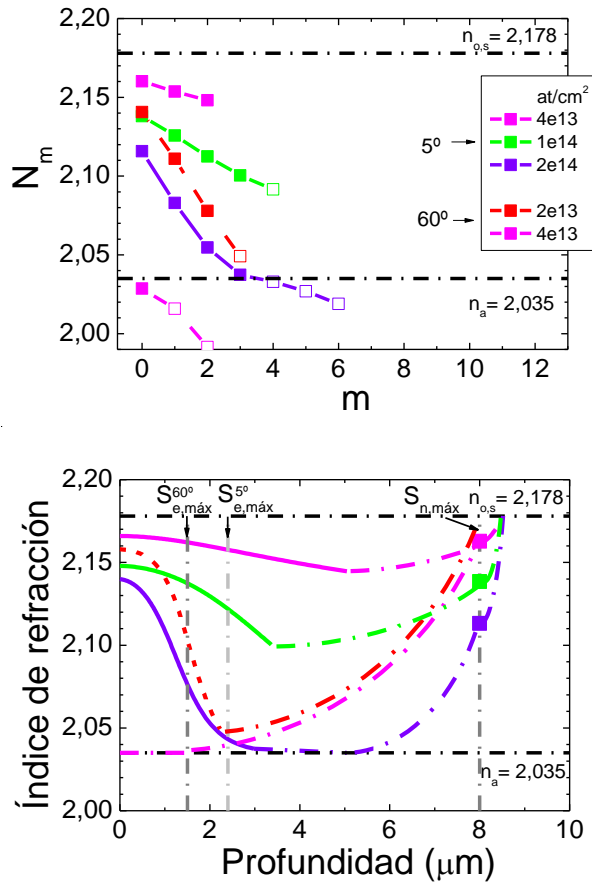


Figura 8.11. Índices efectivos (superior) y perfiles de índice de refracción (inferior), para la polarización ordinaria, de las guías fabricadas en LT con Si 40 MeV a 5° (línea continua) y 60° (línea discontinua) de incidencia. También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{o,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear, S_n , y electrónico, S_e .

Los resultados para las guías de onda generadas en LT en irradiaciones de Si 40 MeV a 5° de incidencia son los mismos que se presentaron en el apartado 7.4. Para la menor de las fluencias, 4×10^{13} iones/cm², el valor donde se alcanza el mínimo índice de refracción se encuentra desplazado a profundidades menores que la posición donde el poder de frenado nuclear es máximo, lo cual indica que el daño electrónico ya no es despreciable a esta fluencia. A medida que se aumenta

la fluencia de irradiación, se produce una disminución del índice de refracción que alcanza el valor del material amorfo para la fluencia 2×10^{14} iones/ cm^2 . A esta fluencia, además de obtenerse un perfil de índice de refracción aproximadamente de tipo escalón, la capa de daño se ha desplazado a una profundidad menor que coincide con la posición del máximo de poder de frenado electrónico, esto es, a $2,4 \mu\text{m}$. De nuevo, en este caso, si comparamos los ritmos de dañado en las posiciones de máximo poder de frenado electrónico y nuclear, observamos que el índice de refracción decrece mucho más rápido debido a los procesos de daño electrónico inducido por los iones que en los procesos de daño nuclear, como muestran los puntos de índice de refracción obtenidos a través de la medida de reflectancia.

En el caso de las irradiaciones con iones de Si 40 MeV a 60° , para la fluencia 2×10^{13} iones/ cm^2 el perfil de índice de refracción que se obtiene es de tipo escalón, alcanzando el mínimo valor de índice de refracción prácticamente en la posición donde el poder de frenado electrónico es máximo, y siendo éste muy cercano al valor de índice de refracción para el material amorfo. En este caso, a 2×10^{13} iones/ cm^2 , se obtiene un perfil de índice de refracción muy similar al obtenido en las irradiaciones con Si 40 MeV a 5° a fluencias un orden de magnitud mayores. Al doblar la fluencia de irradiación, esto es, 4×10^{13} iones/ cm^2 , se alcanza la completa amorfización del material, cuyo índice de refracción es $n_a = 2,035$. Si lo comparamos con los resultados obtenidos en las irradiaciones realizadas a 5° de incidencia, para las primeras fluencias en las que el daño electrónico comienza a no ser despreciable, en torno a 4×10^{13} iones/ cm^2 , en irradiaciones a 60° de incidencia se produce la amorfización total de la muestra.

Estos resultados, muestran que, para irradiaciones con iones de flúor y, en el caso más evidente, de silicio que inciden con ángulos iguales o mayores a 45° , la formación del daño en LT se produce de manera más rápida que en las irradiaciones a incidencia normal, o cuasi normal. En el caso de las irradiaciones en las que el ángulo de incidencia es significativo, el daño electrónico se hace relevante para fluencias menores, pudiendo obtener guías de onda ópticas de perfil de índice de refracción de tipo escalón y de gran salto de índice a fluencias de hasta de un orden de magnitud menores que en irradiaciones realizadas a 5° de incidencia. Este efecto no ha sido observado, sin embargo, en LN donde, el ángulo de irradiación, no parece jugar un papel fundamental en la formación del daño [91].

Teniendo en cuenta las curvas de poder de frenado mostradas en las Figuras 8.8 y 8.10, se puede observar que en las irradiaciones con ángulos superiores a 45° de incidencia, los poderes de frenado electrónico y nuclear se solapan para valores más altos de pérdida de energía, por lo que el poder de frenado efectivo resulta más alto en el caso de irradiaciones con ángulo con respecto a irradiaciones a incidencia normal, llegando incluso a ser de casi el doble, como resulta utilizando iones de silicio. Los resultados aquí presentados, por tanto, serían una clara evidencia de la sinergia existente entre el daño de tipo nuclear y de tipo electrónico inducido por los iones en el material durante su irradiación..

8.3. Efecto del daño previo de tipo nuclear

Con el objetivo de ampliar el estudio sobre los efectos de la sinergia entre el daño electrónico y el daño nuclear inducido por los iones en un material, se han llevado a cabo varias irradiaciones con iones de F a 20 MeV con el fin de generar guías de onda ópticas por medio del daño electrónico inducido por los iones, en muestras de LT con una cantidad de daño de tipo nuclear, generado previamente a través de la irradiación de estas muestras con iones de F a 9 MeV.

En la Figura 8.12 se representan las curvas de poder de frenado electrónico (en línea continua) y nuclear (en línea de puntos) para los casos de iones de F 9 MeV y F 20 MeV, a 5° de incidencia en LT. Como se puede observar, el máximo de poder de frenado nuclear de los iones de F a 9 MeV coincide con el máximo de poder de frenado electrónico de los de F a 20 MeV.

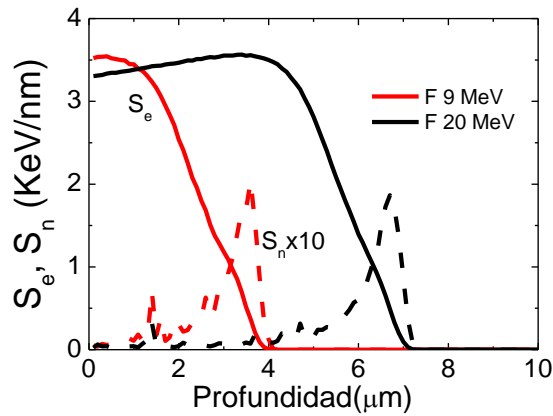


Figura 8.12. Curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea de puntos) para iones de F a 9 MeV y 20 MeV, a 5° de incidencia, en LiTaO₃. Nótese que S_n se ha multiplicado por diez por facilitar la vista.

En la Figura 8.13 se representan la medida de índices efectivos de los modos guiados (izquierda) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (derecha), para la polarización ordinaria, de las guías de onda ópticas generadas en LT con iones de F a 9 MeV, de fluencia 4e14 iones/cm², con iones de F a 20 MeV, de fluencia 2e15 iones/cm², y de la muestra irradiada previamente con F a 9 MeV y posteriormente a 20 MeV, alcanzando una fluencia final de 2,4e15 iones/cm². También se muestran los índices de refracción tanto del sustrato virgen, $n_{o,s}$, como del material amorfo, n_a , además de indicar las posiciones de los máximos de poder de frenado electrónico, S_e , y nuclear, S_n .

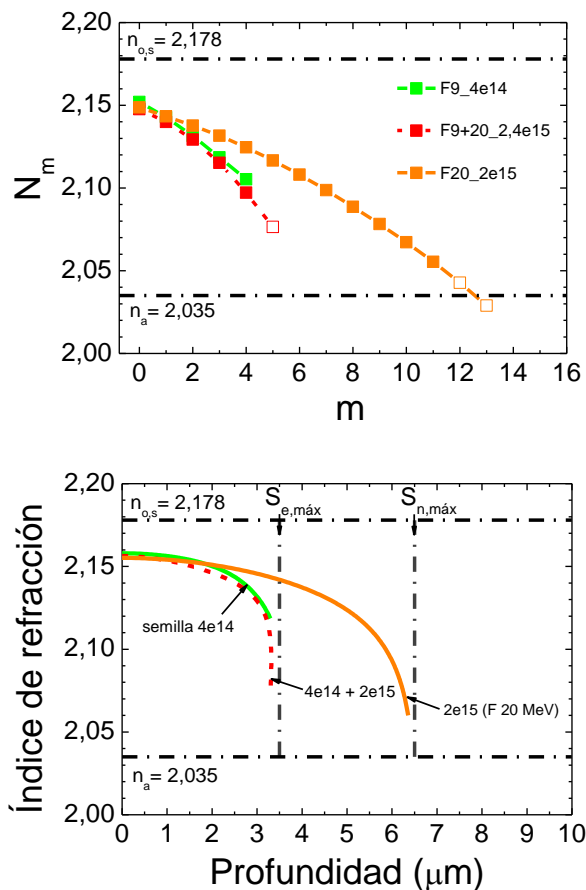


Figura 8.13. Índices efectivos (superior) y perfiles de índice de refracción (inferior), para la polarización ordinaria, de las guías fabricadas en LiTaO_3 con F 9 MeV o con F 20 MeV (en líneas continuas), y con F 9 MeV y luego irradiadas con F 20 MeV (en líneas de puntos). También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{o,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear, S_n , y electrónico, S_e .

Como se puede observar, el perfil de índice de refracción de la guía de onda óptica fabricada con F 9 MeV ($4e14$ iones/ cm^2) alcanza su mínimo valor a la profundidad que coincide con el máximo de poder de frenado nuclear estimado por SRIM, en torno a $3,5 \mu\text{m}$. Esta guía de onda también presenta una disminución en el índice de refracción a lo largo de toda la trayectoria del ion, debido a los procesos de daño electrónico que actúan en todo el perfil ya que, el poder de frenado

electrónico además de tomar valores que no son despreciables en esta situación, alcanza su valor máximo en la superficie de la muestra.

A continuación, esta misma guía de onda fue irradiada con iones de F 20 MeV, también a 5° de incidencia, hasta llegar a una fluencia total de $2,4 \times 10^{15}$ iones/cm² en la muestra. En este caso, el perfil de índice de refracción de la guía de onda obtenida en la posterior irradiación con F a 20 MeV, a pesar de presentar en la superficie una forma similar a las guías tratadas anteriormente, alcanza el valor mínimo de índice de refracción a los 3,5 μm , esto es, en la misma posición en la que se encuentra el máximo de poder de frenado electrónico.

Estos resultados, aunque son preliminares, ponen de manifiesto que la existencia de una cierta cantidad de daño en el material inducido a través de las interacciones nucleares con los átomos del material, favorece la posterior generación del daño inducido por interacciones de tipo electrónico. De esta forma, el daño nuclear se utilizaría para desencadenar los procesos de daño electrónico, alcanzando un nivel mayor de daño en el material a igualdad de fluencia. Por tanto, los datos presentados son una prueba de la sinergia existente entre el poder de frenado nuclear y electrónico en LT, a través de una técnica distinta al RBS-c, que es el método utilizado en la referencia [139].

Capítulo 9. Daño en LiTaO_3 y comparación con LiNbO_3

A pesar de que el LiTaO_3 (LT) y el LiNbO_3 (LN) son materiales muy similares, presentan algunas diferencias significativas en su respuesta al daño inducido en irradiaciones con iones de F, C y Si. Con el objetivo de estudiar la formación de dicho daño en ambos materiales, se han llevado a cabo medidas del cambio en la reflectancia en muestras de LT y LN en diversas irradiaciones.

Además, como se comentaba anteriormente, no se dispone de datos publicados sobre el umbral de amorfización del LiTaO_3 . Aunque se ha podido estimar un valor de dicho umbral en comparación con el LiNbO_3 , evaluar de forma más precisa el umbral de amorfización del LT ha sido una prioridad a lo largo de este trabajo. A continuación, se exponen los resultados correspondientes al estudio de las cinéticas del daño generado por los iones en LT y en LN, y los correspondientes al umbral de daño del LT y su comparación con el LN.

9.1. Cinéticas de formación del daño en LiTaO_3 y comparación con LiNbO_3

Con los resultados presentados hasta ahora, se puede obtener bastante información sobre la formación de daño inducido por irradiación con iones pesados en LT. Con el fin de estudiar más detalladamente el proceso de formación del daño en un amplio rango de valores de poder de frenado electrónico, se han llevado a cabo irradiaciones con distintos iones a diferentes energías tanto en LT como en LN. En dichas irradiaciones, se ha realizado la medida de reflectancia in situ, según se describe en el apartado 6.2.2, ya que, en la primera etapa de formación del daño, cuando todavía no ha comenzado el material a amorfizarse y, por tanto, no existen fenómenos interferenciales que "contaminen" la medida, la reflectancia puede indicar el ritmo al cual se genera el daño en los distintos casos utilizados.

En la Figura 9.1 se muestran las curvas de poder de frenado electrónico (línea continua) y nuclear (línea de puntos) para las distintas irradiaciones llevadas a

cabo en LT, a energías del orden de cientos de KeV (izquierda) y del orden de los MeV (derecha). Como se puede observar, para las irradiaciones de baja energía el poder de frenado nuclear predomina sobre el electrónico, mientras que en las irradiaciones de energías altas es el poder de frenado electrónico el que predomina sobre el nuclear. De esta manera, se obtiene un amplio rango de energías, en distintos regímenes, para el estudio de la formación del daño inducido por los iones en LT y LN.

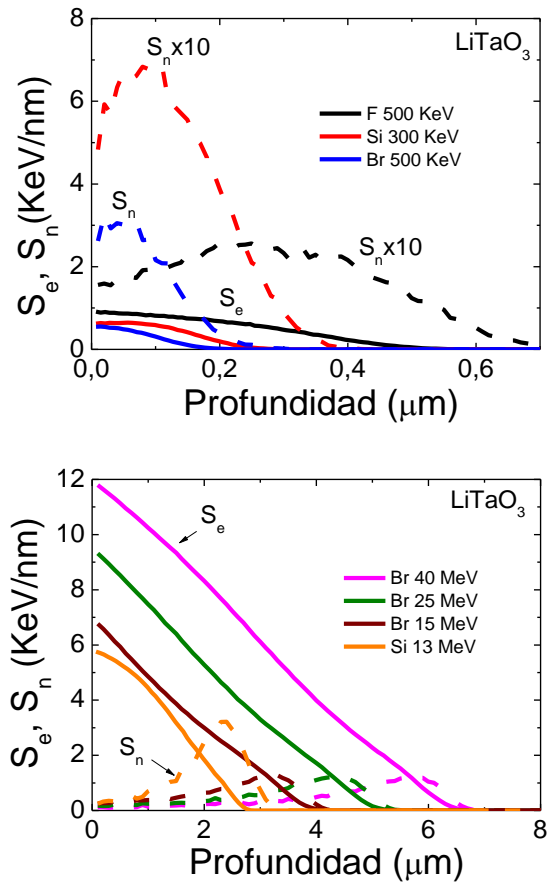


Figura 9.1. Curvas de poder de frenado nuclear, S_n , y electrónico, S_e , para las distintas irradiaciones llevadas a cabo en LiTaO_3 con iones de F, Si y Br a bajas energías (superior) y altas energías (inferior).

Las irradiaciones se llevaron a cabo 45° de incidencia de forma que se pudiera medir la reflectancia in situ de las muestras a incidencia cuasi normal de la luz, como se comentaba en el apartado 6.2.2. Las cinéticas de reflectancia obtenidas en las distintas irradiaciones se representan en la Figura 9.2 en función de la fluencia, tanto del LT (línea continua) como del LN (línea de puntos). El 100% representa la reflectancia de una muestra virgen, que se toma como referencia. También se indican los valores de reflectancia del material amorfo, para el LT y el LN, obtenido del valor de índice de refracción. Estos valores se encuentran resumidos en la Tabla 9.1, junto con los valores de los cristales vírgenes.

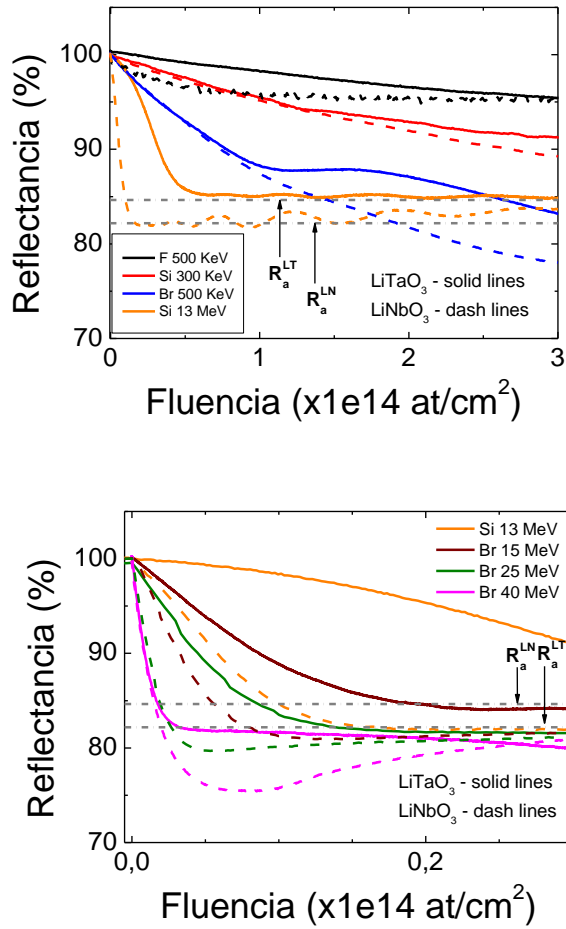


Figura 9.2. Reflectancia in situ, en función de la fluencia, de LiTaO_3 (línea continua) y LiNbO_3 (línea de puntos) en distintas irradiaciones, de baja energía (superior) y alta energía (inferior), con respecto a una muestra virgen, que corresponde al 100% de reflectancia.

	LiTaO_3		LiNbO_3	
	virgen	amorfo	virgen	amorfo
Índice de refracción (n_o)	2,178	2,035	2,287	2,10
Reflectancia	0,137	0,116	0,153	0,126

Tabla 9.1. Índices de refracción (para la polarización ordinaria) y correspondiente reflectancia de LiTaO_3 y LiNbO_3 , para el material virgen o amorfo.

Como se puede observar, en las irradiaciones a bajas energías, esto es, en los casos de F a 500 KeV, Si a 300 KeV y Br a 300 KeV, las cinéticas de reflectancia para LT y LN son muy similares, lo que indica que el ritmo al que se dañan los materiales durante la irradiación es prácticamente el mismo. Para energías intermedias, en las irradiaciones con Si a 13 MeV se observa una importante diferencia entre las cinéticas de reflectancia de LT y LN. En este caso, la curva del LN presenta una pendiente mucho mayor que en el caso del LT, lo cual indica que en el primer material la formación del daño ocurre de manera más rápida que en el LT, por lo que se puede generar la misma cantidad de daño en ambos materiales a fluencias mucho menores en el caso del LN que el LT. Este mismo comportamiento se observa también para los casos de Br a 15 y 25 MeV. Sin embargo, en el caso de Br a 40 MeV, en el que el poder de frenado electrónico se encuentra por encima del umbral de amorfización de ambos materiales, las cinéticas de reflectancia se igualan, volviendo a hacerse similares los ritmos de formación del daño en LN y LT. Si interpretamos estos datos en función de las trazas amorfas que se generan en ambos materiales en los casos de irradiaciones con Br, cuyo poder de frenado electrónico se encuentra por encima del umbral de amorfización de ambos materiales, podemos concluir que las trazas amorfas generadas en los dos materiales son similares y con radios comparables.

Estos resultados permiten concluir que LN y LT presentan, en general, comportamientos diferentes en la irradiación con iones pesados a altas energías. Se ha observado que el daño inducido en estas irradiaciones se forma de manera más rápida en LN que en LT, lo que se puede explicar debido a que el umbral de amorfización del LN es significativamente más bajo que el estimado para LT, según el modelo del pico térmico. Sin embargo, en los casos en los que, en estas irradiaciones, el poder de frenado electrónico se encuentre muy por encima del umbral de amorfización, los dos materiales tienen un comportamiento semejante y presentan ritmos de generación de daño prácticamente idénticos, aunque ambos

materiales poseen distintos índices de refracción del material amorfo y por lo tanto las cinéticas de reflectancia saturan en valores diferentes en cada material. Esto mismo ocurre en el caso de las irradiaciones a bajas energías, en las que el poder de frenado nuclear es dominante frente al electrónico y cuyo máximo se encuentra en la superficie, donde el LN y el LT presentan de nuevo ritmos similares de formación del daño durante la irradiación.

9.2. Umbral de amorfización de LiTaO_3

En el apartado 7.1, se realizó una estimación del umbral de amorfización del LT a través del valor conocido del umbral de amorfización del LN, y se encuentra en torno a 8,4 KeV/nm. Cabe destacar que la determinación precisa del umbral de amorfización $S_{e,th}$, es esencial para entender los mecanismos del daño electrónico y poner a prueba los modelos físicos. Esta determinación depende de la medida del área de la traza amorfa (comúnmente denominada sección eficaz de daño, σ) generada en las irradiaciones, en función del poder de frenado electrónico, y su extrapolación para un radio de la traza igual a cero [13].

Con el objetivo de poder hacer una estimación experimental del umbral para la generación de daño electrónico en LT, se ha calculado la sección eficaz para las distintas irradiaciones a través de las medidas de reflectancia realizadas en LN y LT presentadas en el apartado anterior. Para ilustrar el método por el que se obtiene esta sección eficaz, se utilizará el caso de LT irradiado con Br a 15 MeV, cuyas curvas de reflectancia se muestran en la Figura 9.3, tanto para el LT como para el LN, además de los valores de la reflectancia cuando se alcanza la amorfización del material, obtenidos de los índices de refracción del LT y LN amorfos.

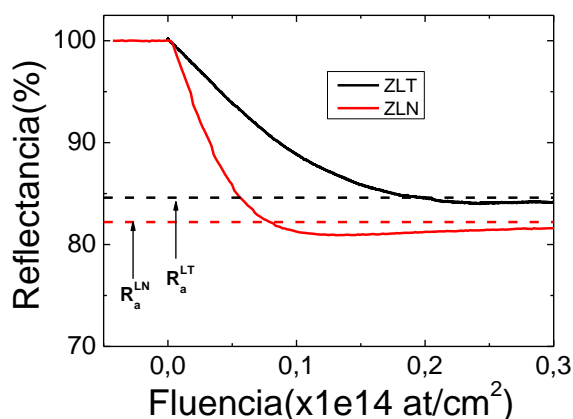


Figura 9.3. Cinéticas de reflectancia in situ, en función de la fluencia, de LiTaO_3 (LT) y LiNbO_3 (LN) durante la irradiación con Br a 15 MeV, con respecto a una muestra virgen. También se representan los valores de la reflectancia para el material amorfizado en ambos casos.

Como punto inicial, se convierte el espectro de reflectancia obtenido ya que la medida se realiza tomando como referencia la reflectancia de una muestra de LT virgen. Por tanto, la reflectancia decrece desde el valor para el material virgen hasta el valor para el material amorfo, como se muestra en la Figura 9.4.

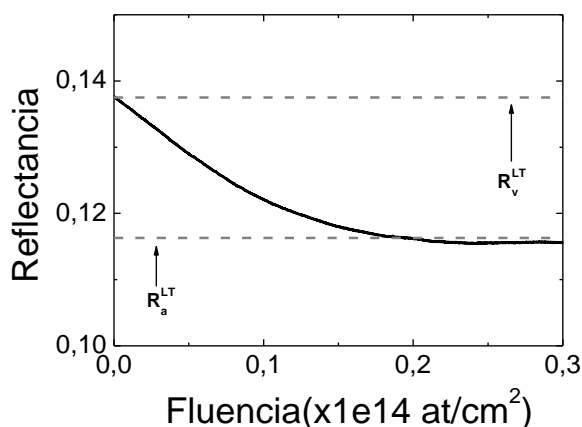


Figura 9.4. Reflectancia, en función de la fluencia, de LiTaO_3 durante la irradiación con Br a 15 MeV. También se representan los valores de la reflectancia para una muestra virgen y amorfizada, R_v^{LT} y R_a^{LT} respectivamente.

De esta curva de reflectancia en función de la fluencia, $R(\phi)$, se puede obtener la fracción de daño en LT generado en la irradiación con Br a 15 MeV, a través de la ecuación:

$$1 - [R(\phi) - n_{\text{amorfo}}] / [n_{\text{virgen}} - n_{\text{amorfo}}] \quad (9.1)$$

La fracción de daño obtenida se muestra en la Figura 9.5 para el caso de irradiaciones con Br a 15 MeV en LT. Esta curva se puede ajustar, para las fluencias más bajas, a una recta de cuya pendiente se obtiene la sección eficaz del daño para dicha irradiación.

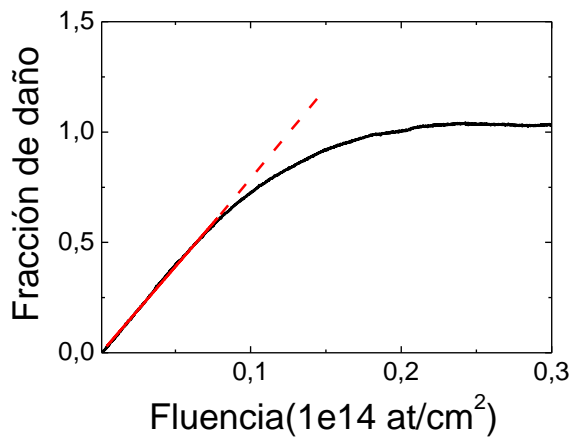


Figura 9.5. Curva de fracción de daño, en función de la fluencia, obtenida de la reflectancia in situ de una muestra de LiTaO₃ irradiada con Br a 15 MeV.

Los resultados obtenidos para las secciones eficaces de ambos materiales en función del poder de frenado electrónico de cada uno de los casos evaluados, esto es, Si 13 MeV, Br 15, 25 y 40 MeV se muestran en la Figura 9.6. También se muestran las secciones eficaces obtenidas en LiNbO₃ a través de RBS-c, extraídas de la referencia [140].

Como se puede observar, si extrapolamos los valores obtenidos para las irradiaciones de alto poder de frenado electrónico a aquellos que dan un radio de traza igual a cero, esto es, una sección eficaz de daño nula, podemos obtener estimación experimental del umbral de amorfización tanto para LN como para LT. En el caso del LN, el valor umbral de poder de frenado electrónico suficiente para

que cada ion genere una traza amorfa a su paso es de $\sim 6 \text{ KeV/nm}$, lo cual corresponde con los valores publicados en la literatura. Para el LT, se estima que el umbral de amorfización se encuentra en torno a $8,5 \text{ KeV/nm}$, que es un valor muy cercano a la estimación teórica comentada anteriormente.

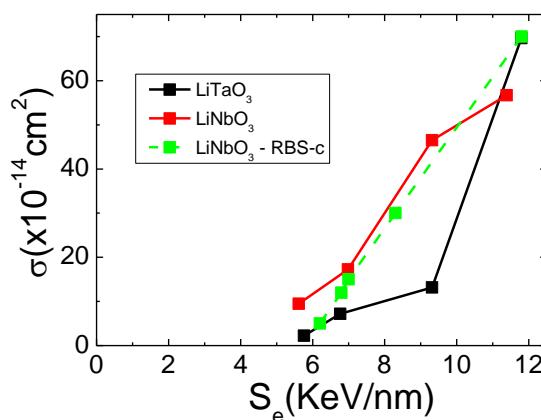


Figura 9.6. Sección eficaz obtenida de las cinéticas de reflectancia para LiTaO_3 y LiNbO_3 . También se muestra la sección obtenida de medidas de RBS-c realizadas en LiNbO_3 , extraída de la referencia [140].

Aunque estos resultados no resulten del todo exactos en cuantificación debido a los diferentes factores de corrección utilizados que incrementan el error experimental cometido en la medida, se pueden interpretar como una estimación válida ya que los datos obtenidos concuerdan con los cálculos teóricos expuestos previamente.

Capítulo 10. Resultados complementarios en LiTaO₃

10.1. Efecto de la temperatura durante la irradiación

En el tipo de irradiaciones utilizadas a lo largo de esta tesis, como se comentaba anteriormente, se generan centros de color que actúan como centros de absorción de la luz y comprometen la calidad de la guía de onda generada en el material a través del daño estructural inducido por los iones. Para eliminar dichos centros de color, se han realizado distintos tratamientos térmicos posteriores a la irradiación de cristales de LT y estudiado su efecto sobre las estructuras generadas en el material a través del daño inducido por los iones, cuyos resultados se expusieron en el apartado 7.6. Con el objetivo de estudiar el efecto de la temperatura en las de guías de onda ópticas durante su formación, se han llevado a cabo distintas irradiaciones en LT con iones de Si 35-40 MeV a temperatura ambiente y a temperaturas en el rango 300-325°C.

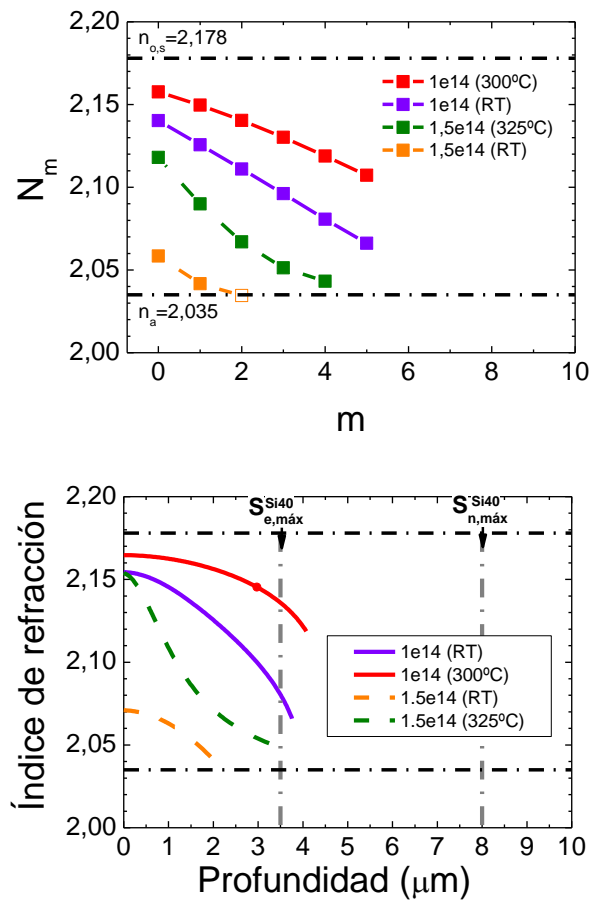


Figura 10.1a. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior) de las guías de onda fabricadas a distintas temperaturas en LiTaO_3 con iones de Si 40 MeV y fluencia $1e14$ iones/ cm^2 e iones de Si 35 MeV y fluencia $1.5e14$ iones/ cm^2 , para la polarización ordinaria, n_o . También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{o,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear y electrónico, S_n y S_e respectivamente, para el caso del Si 40 MeV.

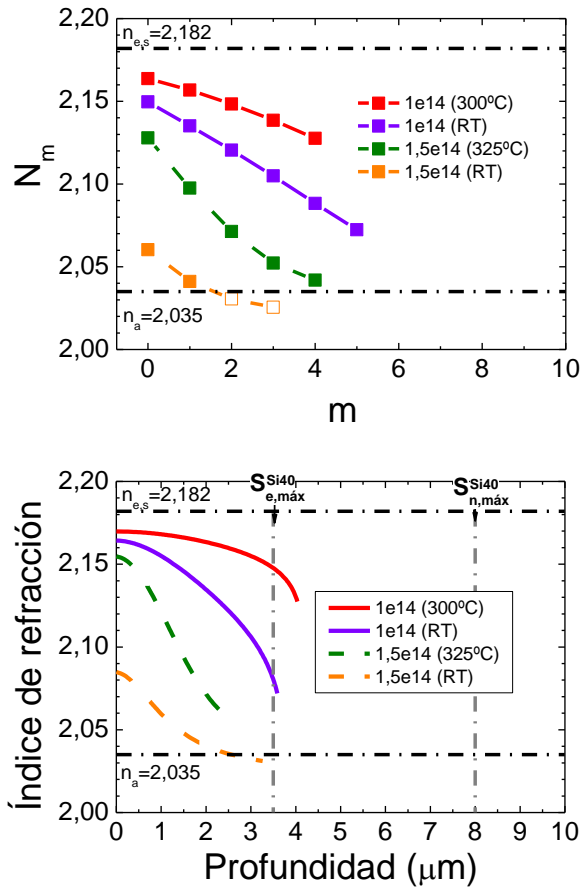


Figura 10.1b. Medida de índices efectivos (superior) y los correspondientes perfiles de índice de refracción (inferior) de las guías de onda fabricadas a distintas temperaturas en LiTaO₃ con iones de Si 40 MeV y fluencia $1e14$ iones/cm² e iones de Si 35 MeV y fluencia $1.5e14$ iones/cm², para la polarización extraordinaria, n_e . También se representan los índices de refracción correspondientes al sustrato virgen ($n_{e,s}$) y al amorfo (n_a), así como las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear y electrónico, S_n y S_e respectivamente, para el caso del Si 40 MeV.

En la Figura 10.1 se representa la medida de índices efectivos y los correspondientes perfiles de índice de refracción para las muestras de LT irradiadas con iones de Si 35-40 MeV a varias temperaturas, para la polarización ordinaria (Fig. 10.1a) y extraordinaria (Fig. 10.1b) de la luz. También se representan los valores de los índices de refracción del sustrato, $n_{o,s}$ y $n_{e,s}$, y del

material amorfo, n_a , además de las posiciones de los máximos de poder de frenado nuclear y electrónico, $S_{n,max}$ y $S_{e,max}$ respectivamente, para iones de Si a 40 MeV.

Como se puede observar, en todos los casos aquí expuestos la capa de daño que da lugar a la formación de la guía de onda óptica en superficie coincide con la posición del máximo de poder de frenado electrónico, por lo que estas guías de onda son generadas a partir de la formación del daño inducido por las interacciones electrónicas con los iones de silicio. En las irradiaciones llevadas a cabo a temperatura ambiente, se producen guías de onda de perfiles de índice de refracción consistentes con los presentados en el apartado 7.4, mostrando, para la fluencia más baja, $1e14$ iones/cm², un perfil de índice de refracción gradual y alcanzando su mínimo valor en $3,5 \mu m$. En cambio, para la fluencia $1,5e14$ iones/cm², el índice de refracción decrece drásticamente, también en superficie, llegando a alcanzar el valor del material amorfo en profundidades menores que la posición del máximo de daño electrónico.

En el caso de las irradiaciones realizadas a temperaturas en torno a los 300°C, se puede observar que, en general, el daño que presentan estas guías de onda es menor que el generado en irradiaciones a temperatura ambiente, para ambas fluencias. Para la fluencia más baja, $1e14$ iones/cm², se produce una recuperación del daño de manera creciente con la profundidad, pero conservando la forma del perfil de índice de refracción obtenida en las irradiaciones a temperatura ambiente. En el caso de la fluencia $1,5e14$ iones/cm², el cambio es todavía más apreciable ya que, a pesar de que el valor mínimo de índice de refracción se produce a la misma profundidad que en el caso de las irradiaciones a temperatura ambiente, el índice de refracción en superficie se recupera hasta casi obtener el mismo valor que el que presenta la guía de onda con $1e14$ iones/cm² fabricada a temperatura ambiente, generándose un perfil de índice de refracción más parecido a un perfil de tipo escalón que en los casos obtenidos anteriormente.

Aunque, a priori, la irradiación a temperaturas en torno a 300°C parece una forma de mejorar la calidad de las guías de onda ópticas fabricadas en LT, como se comentaba en el capítulo 7, la aplicación de la temperatura no siempre genera buenos resultados ya que, en la mayoría de los casos, se produce la aparición de grietas e incluso la rotura de la muestra. Se asume que este hecho es debido a que la temperatura favorece la liberación de las tensiones acumuladas en el cristal a lo largo de la irradiación.

Además, con el objetivo de estudiar la evolución de los centros de color generados en la muestra con la temperatura durante la irradiación y no solo después, como presentado en el apartado 7.6, se ha medido la transmitancia de las muestras de LT durante su irradiación con iones de Si a 40 MeV a temperatura ambiente y a 300°C, según el montaje detallado en el apartado 5.2.2. En la Figura 10.2 se muestra la medida de la transmitancia in situ, a 633 nm, obtenida en las irradiaciones de LT con Si 40 MeV a temperatura ambiente y 300°C.

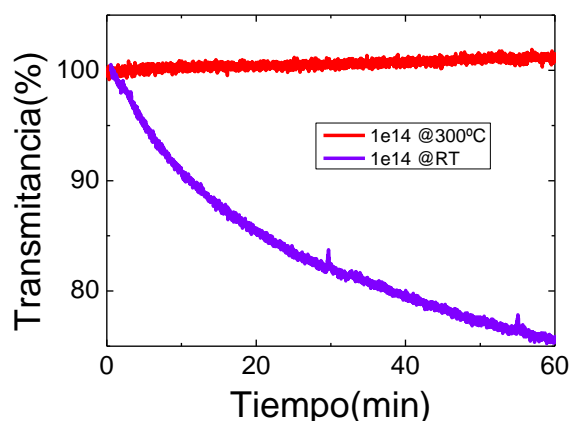


Figura 10.2. Transmitancia in situ, en función del tiempo de irradiación, medida en LiTaO_3 irradiado con iones de Si 40 MeV a $1\text{e}14$ iones/ cm^2 a temperatura ambiente y a 300°C.

En la irradiación a temperatura ambiente, se puede observar que la transmitancia decrece con el aumento de la fluencia, debido a la generación de defectos que actúan como centros de absorción de la luz, esto es, centros de color. Sin embargo, en la irradiación a 300°C se puede ver que la transmitancia apenas decrece, lo que indica que se produce una recuperación inmediata de este tipo de defectos generados por los iones. De nuevo, se observa la existencia de una mínima absorción inducida por la irradiación, como se había visto en el apartado 7.6, que permanece aún a temperaturas del orden de los 300°C.

Si comparamos estos resultados con los perfiles de índice de refracción presentados anteriormente (Fig. 10.1), se puede ver que, mientras que los centros

de color se consiguen recuperar de manera casi completa a través de la irradiación con calor, o tratamiento térmico in situ, se produce una recuperación mucho menor en el daño estructural generado por los iones. Estos resultados indican que ambos procesos de daño son independientes y que los defectos puntuales asociados a la coloración del material generados durante la irradiación no son los precursores de la formación del daño estructural, como se ha observado en otros materiales [141].

Por otro lado, también se han llevado a cabo medidas de la transmitancia de LT en irradiaciones con iones de flúor. En la Figura 10.3 se representa la medida de transmitancia in situ realizada en la irradiación con F a 20 MeV, en función de la fluencia, tomando como referencia la transmitancia de una muestra de LT virgen. Como se puede observar, la curva de transmitancia presenta distintos picos, que corresponden a la inserción de la Faraday Cup para el control de la corriente de haz durante la irradiación. Esta medida se compara con el índice de refracción estimado para la capa de máximo daño nuclear, en irradiaciones con F 500 KeV, y en la capa de máximo daño electrónico, a través de irradiaciones con F 25 MeV, representado en la Figura 8.5.

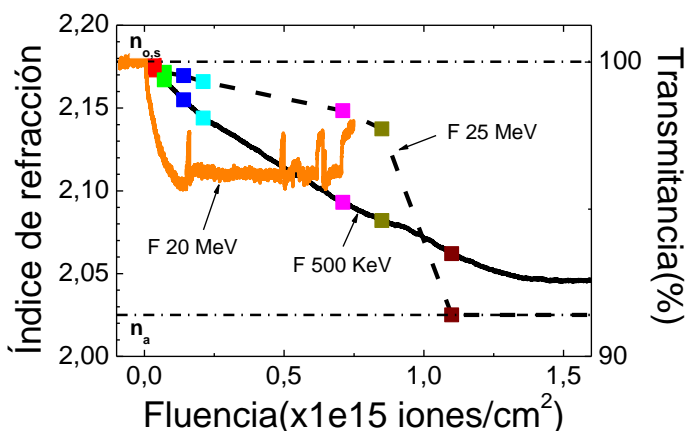


Figura 10.3. Medida de la transmitancia in situ de una muestra de LT irradiada con F 20 MeV y su comparación con la variación en el índice de refracción en las posiciones de máximo daño nuclear (obtenidas en irradiaciones con F a 500 KeV) y electrónico (obtenidas en irradiaciones con F a 25 MeV).

Como se puede observar, la transmitancia decae rápidamente para las primeras fluencias y satura para fluencias en torno a $1\text{e}14$ iones/ cm^2 . En cambio, la variación de índice de refracción asociada a los procesos de daño nuclear decrece de forma suave, incluso después de la saturación en la curva de transmitancia.

Los resultados aquí expuestos indican que los dos mecanismos de daño inducido por los iones que se tratan a lo largo de este trabajo, la generación de defectos puntuales y la formación de daño estructural en el material, son dos procesos independientes y los defectos puntuales que se forman en la irradiación no son precursores del daño generado en la estructura del cristal.

10.2. Conductividad eléctrica de la capa amorfa en LiTaO_3 y LiNbO_3

De manera complementaria, se han estudiado las propiedades eléctricas de las capas de daño generadas en la irradiación con iones de Br a 40 MeV, en LT y en LN, para varias fluencias de irradiación. Este estudio surgió como una colaboración con el Dr. Miguel Tardío³ y su grupo de investigación, en la Universidad Carlos III, con extensa experiencia en estudiar los cambios microestructurales debidos al daño generado en la irradiación con iones, con el fin de modificar las propiedades tanto eléctricas como ópticas [142].

Particularmente, se ha observado un incremento de varios órdenes de magnitud en la conductividad eléctrica de algunos materiales al ser implantados con iones ya que, como resultado de estas irradiaciones, se produce una capa conductora en la superficie del material, principalmente a los cambios estructurales inducidos por los iones [143–147]. Con el objetivo de investigar las propiedades de conducción de las capas amorfas generadas en cristales de LT y LN se ha estudiado la dependencia de la conductividad eléctrica (directa, DC) con la temperatura, en el rango 295-420 K. En la Figura 7.13 se muestran las curvas de poder de frenado, tanto electrónico como nuclear, para los iones de Br 40 MeV en LT y LN, además de un esquema de las trazas amorfas que se obtienen mediante dichas irradiaciones en ambos materiales.

³ Departamento de Física, Escuela Politécnica Superior, Universidad Carlos III, Leganés (Madrid), España.

En la Figura 10.4 se muestran las curvas características I-V, a 313 K y 413 K, de las muestras de LT y LN irradiadas con iones de Br 40 MeV a 1×10^{14} iones/cm².

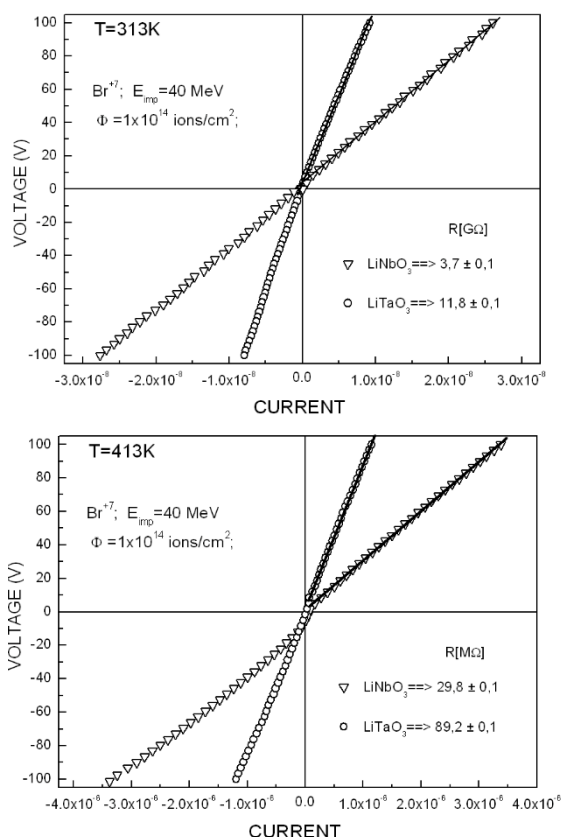


Figura 10.4. Curvas características de intensidad-voltaje a 313 K (superior) y 413 K (inferior) de las muestras de LT y LN irradiadas a temperatura ambiente con Br 40 MeV y una fluencia de 1×10^{14} iones/cm².

Estas curvas muestran un comportamiento eléctrico lineal (de tipo óhmico) en los dos materiales en todo el rango de voltaje estudiado (-100V, 100V), lo cual indica que la corriente que atraviesa la muestra está limitada fundamentalmente por la resistencia del material (*bulk*) [158]. La pendiente del ajuste lineal de las curvas I-V, a distintas temperaturas, se utilizó para obtener los valores de resistencia en

ambos casos. A pesar del hecho conocido de que los contactos tienen en estos materiales un carácter de tipo bloqueante [149,150], en el caso de las muestras en las que las curvas características no tienen un comportamiento estrictamente óhmico (Fig.10.4, T=413K) [151], se ha considerado solo la línea recta para valores altos del campo eléctrico con el fin de evitar la contribución debida al contacto.

Se puede observar que, para la misma fluencia, esto es, $1e14$ iones/cm², los cristales de LT manifiestan una resistencia mayor que en el caso del LN. Estos resultados indican que el daño, o la acumulación de los defectos intrínsecos involucrados en la conductividad, es mayor en los cristales de LN. Particularmente, para las dos temperaturas representadas, la resistencia del LT es aproximadamente tres veces la resistencia del LN.

De las curvas características I-V, se ha obtenido la dependencia de la resistencia de las muestras con la temperatura y se muestra en la Figura 10.5 para el caso del LT (arriba) y LN (abajo) irradiados con Br a 40 MeV a distintas fluencias.

En ambos cristales, el proceso de conducción se activa con una energía de, aproximadamente, 0,55 V. Este valor de energía de activación presenta cierta tendencia a aumentar cuando la fluencia decrece, lo que puede vincularse con la baja densidad de defectos intrínsecos encontrados en la capa de daño, que están claramente relacionados con el cambio en la conductividad eléctrica de las muestras observado. Además, la resistividad de la muestra decrece a medida que la fluencia aumenta en ambos cristales pero, como se comentaba anteriormente, la concentración de defectos generada en LT es menor y, por tanto, responsable de que su resistencia sea mayor que la del LN a la misma fluencia.

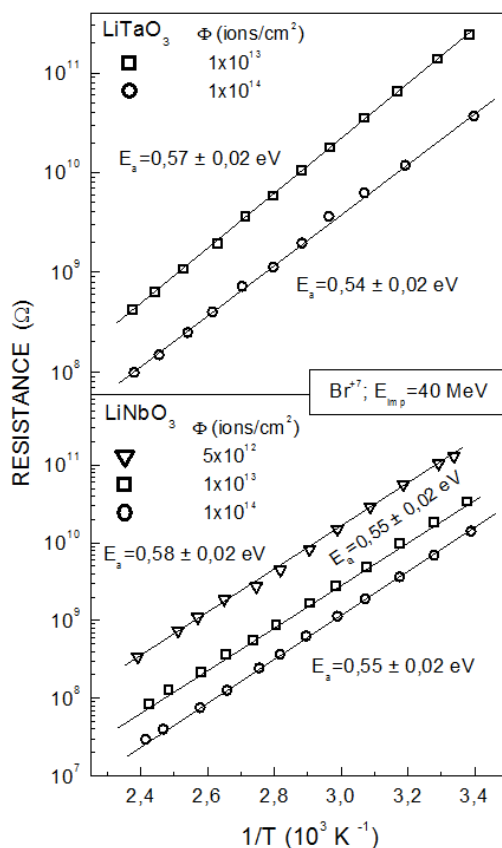


Figura 10.5. Gráfico de Arrhenius de la resistencia eléctrica de los cristales de LiTaO₃ (superior) y LiNbO₃ (inferior) irradiados con iones de Br a 40 MeV a las distintas fluencias indicadas. También se indica la energía de activación obtenida de cada uno de los ajustes.

Del espesor de la capa de daño medido en estas muestras, de igual tamaño, presentado en la Figura 7.14 (4,3 y 5,8 μm, respectivamente) se han obtenido los valores de la conductividad eléctrica de los cristales de LN y LT irradiados con Br a 40 MeV y 1e14 iones/cm² que se representa en la Figura 10.6.

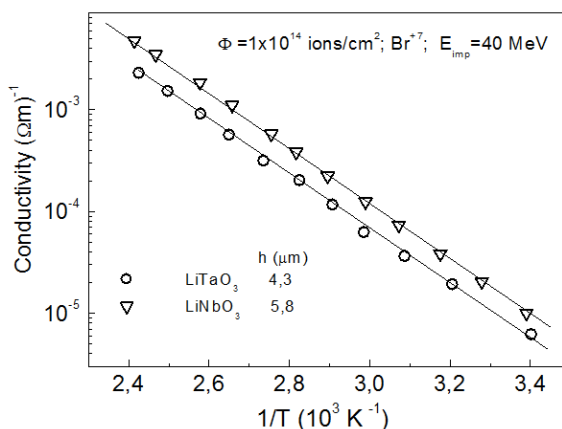


Figura 10.6. Gráfico de Arrhenius de la conductividad eléctrica de cristales de LiTaO_3 y LiNbO_3 irradiados a temperatura ambiente con iones de Br 40 MeV con 1×10^{14} iones/ cm^2 .

Estos resultados muestran que, a igualdad de fluencia, la conductividad eléctrica del LN es aproximadamente el doble que la del LT, y concuerdan con los resultados presentados previamente en la Figura 7.15 obtenidos de la caracterización óptica. Esto indica que, en el rango de temperaturas estudiado, la densidad de defectos generados en la irradiación, que modifican la conductividad eléctrica en estos cristales, es mayor en el caso de LN que en el de LT.

Teniendo en cuenta el rango de temperaturas aquí investigado, en lugar del modelo estándar del mecanismo de salto de rango variable de Mott, que normalmente se usa para bajas temperaturas (cerca de RT) [152–154], se puede defender el modelo más simple de una dependencia lineal de $\log R$ con T^{-1} . Con el fin de verificar si el modelo de salto de rango variable de Mott (VHR) es el mecanismo más apropiado para explicar la conductividad eléctrica en estos cristales se debería investigar un rango de temperaturas más amplio que el aquí presentado, al igual que un rango mayor de fluencias de irradiación.

Con estas consideraciones, de los ajustes obtenidos en las gráficas de resistencia y conductividad eléctrica con respecto a la temperatura (Figs. 10.5 y 10.6) y el hecho de que la energía de activación permanece estable e independiente de la densidad de defectos intrínsecos existente, puede asumirse que la conductividad eléctrica se puede explicar de forma apropiada a través del comportamiento de un material semiconductor [154], con un único nivel energético relacionado con la alta densidad de defectos intrínsecos asociados al daño inducido mediante la irradiación con iones.

Por tanto, de la caracterización eléctrica de las capas amorfas generadas en LT y LN en la irradiación con iones de Br a 40 MeV se puede concluir que ambos materiales muestran un comportamiento de tipo óhmico, a bajas temperaturas y bajos valores del campo eléctrico. Los valores obtenidos para la resistencia eléctrica son mayores en los cristales de LT que en LN, a la misma fluencia, y estos valores decrecen a medida que la fluencia crece. La conductividad eléctrica se activa de manera térmica con una energía de aproximadamente 0,55 eV, que es independiente de las concentraciones tanto de defectos intrínsecos como extrínsecos, en el rango de temperaturas aquí estudiado.

Conclusiones

A lo largo del trabajo aquí presentado se ha llevado a cabo un estudio de los efectos de la irradiación con iones pesados de alta energía en LiTaO_3 , y su comparación con el LiNbO_3 , que es un material de referencia con propiedades estructurales similares. A continuación se exponen las principales conclusiones que se han obtenido en el curso de esta tesis.

- **Guías de onda ópticas en LiTaO_3 (cap 7)**

Se han fabricado guías de onda ópticas en LiTaO_3 mediante irradiación con iones pesados de altas energías, a través tanto del daño nuclear como del daño electrónico, inducido por los iones en el material. En estas irradiaciones se han utilizado diversos iones (C, F y Si) a distintas energías con el objetivo de estudiar un amplio rango de valores de poder de frenado electrónico. De esta forma, se puede observar una transición desde guías de onda ópticas de carácter puramente nuclear a guías generadas a través del daño electrónico, pasando por un estado intermedio donde los procesos de daño electrónico y nuclear son comparables. En este punto, existe una diferencia fundamental con las guías de onda fabricadas en LiNbO_3 ya que, además de que los efectos del daño electrónico son evidentes a fluencias de hasta un orden de magnitud mayores en el caso del LiTaO_3 , en este caso se pueden identificar las contribuciones del daño nuclear y del daño electrónico por separado. Estos resultados son consistentes con la estimación, usando el modelo analítico de pico térmico, del umbral de amorfización mediante excitación puramente electrónica en $S_{e,th} \approx 8,4 \text{ keV/nm}$.

El estudio de guías de onda ópticas se ha realizado en LiTaO_3 de composición estequiométrica y congruente. A pesar de las diferencias en el índice de refracción que presentan ambas composiciones, las guías de onda ópticas fabricadas con iones de F a 20 MeV son similares, por lo que se puede concluir que ambos cristales tienen un ritmo parecido de generación del daño inducido por estos iones.

Del análisis de pérdidas de propagación ópticas se concluye que se pueden fabricar guías de onda ópticas en LiTaO_3 por medio del daño nuclear y del daño electrónico, presentando distintos tipos de perfiles de índice de refracción, con pérdidas de propagación óptica por debajo de 1 dB/cm. Sin embargo, los mejores resultados se obtienen con una cierta combinación entre la fluencia de irradiación y la temperatura de los tratamientos térmicos posteriores ya que, cuando se supera una determinada cantidad de daño en la muestra, el efecto de la

temperatura empeora la calidad del cristal y por tanto de la guía de onda óptica, incrementando las pérdidas de propagación hasta en un orden de magnitud.

- **Sinergia entre los daños nuclear y electrónico en LiTaO_3 (capítulo 8)**

En las guías de onda ópticas fabricadas en LiTaO_3 se pone de manifiesto la existencia de una sinergia entre el daño nuclear y el daño electrónico inducido por los iones. Estos dos procesos de formación, aunque puede resultar uno dominante y otro despreciable en algunos rangos de energía, no son procesos desacoplados, como se puede concluir de los resultados de guías de onda ópticas en LiTaO_3 y las medidas complementarias de reflectancia óptica en irradiaciones a bajas energías ($< 500 \text{ keV}$).

La sinergia entre los dos tipos de daño resulta evidente en las irradiaciones en LiTaO_3 en las que el ángulo de irradiación es mayor que 45° . En estos casos, para una profundidad determinada, a igualdad de poder de frenado nuclear, el poder de frenado electrónico es mayor en las irradiaciones realizadas con ángulo de incidencia, obteniéndose por tanto una cantidad de daño mayor que en las irradiaciones a incidencia normal.

Por otro lado, se ha demostrado que la existencia de una semilla de daño nuclear generada en LiTaO_3 puede potenciar los efectos del daño electrónico generado en irradiaciones posteriores. De esta forma, se hace uso de la sinergia entre el daño electrónico y nuclear que inducen los iones en el material para acelerar la aparición del daño electrónico, y generar guías de onda ópticas en LiTaO_3 a fluencias de irradiación menores.

- **Daño en LiTaO_3 y comparación con LiNbO_3 (capítulo 9)**

A través de la reflectancia medida *in situ*, se han obtenido varias cinéticas de formación del daño en irradiaciones con varios iones a diversas energías, tanto en LiTaO_3 como en LiNbO_3 . En general, se ha obtenido que los dos materiales presentan ritmos de formación del daño distintos, ocurriendo de manera más rápida en el caso del LiNbO_3 , debido a que su umbral de amorfización es menor que aquel del LiTaO_3 . Sin embargo, en las irradiaciones en las que el poder de frenado electrónico es superior al umbral de amorfización de ambos materiales, ambos materiales se comportan de manera similar y presentan ritmos de formación del daño prácticamente iguales. Este mismo comportamiento se ha

observado también en las irradiaciones a bajas energías, en el régimen de colisiones donde predomina el poder de frenado nuclear.

De las medidas ópticas realizadas, se ha extraído la sección eficaz del daño inducido en irradiación con distintos iones a varias energías. De estos resultados, se puede estimar que el umbral de amorfización del LiTaO_3 es de $S_{e,th} \approx 8,4$ keV/nm, que coincide con lo esperado teóricamente dentro del marco del modelo de pico térmico.

- **Resultados complementarios en LiTaO_3 (capítulo 10)**

Por un lado, con el objetivo de estudiar la formación de defectos (centros de color) que actúan como centros de absorción comprometiendo la calidad de la guía de onda óptica y estudiar el efecto de la temperatura en el proceso de fabricación de la misma, se han llevado a cabo irradiaciones a distintas temperaturas por encima de la ambiente. Del análisis de las guías de onda generadas y de los espectros de transmitancia *in situ* obtenidos, se puede concluir que la generación de defectos puntuales y el daño estructural inducido en el material son dos procesos desacoplados e independientes y, por lo tanto, los defectos puntuales no son precursores del daño generado en la estructura del cristal.

Por otro lado, se han llevado a cabo algunas irradiaciones con iones de Br en LiTaO_3 y LiNbO_3 en un rango de fluencias en el que se genera una capa de material amorfo que se extiende desde una profundidad de algunos micrómetros hasta la superficie de las muestras. En ellas, se ha observado un comportamiento de tipo óhmico en ambos materiales, que presentan una resistencia que decrece a medida que aumenta la fluencia de irradiación y que es mayor en el caso del LiTaO_3 .

Referencias

1. J.F. Ziegler, U. Littmark, J.P. Biersack. *The stopping and range of ions in solids*. Pergamon Press, Nueva York, 1985.
2. G.H. Kinchin, R.S. Pease. *The Displacement of Atoms in Solids by Radiation*. Rep Prog Phys., 18 (1955).
3. J.P. Biersack, L.G. Haggmark. *A Monte Carlo computer program for the transport of energetic ions in amorphous targets*. Nucl. Instrum. Methods., 174 (1980).
4. S.P. Ahlen. *Theoretical and experimental aspects of the energy loss of relativistic heavily ionizing particles*. Rev. Mod. Phys., 52 (1980).
5. L.C. Northcliffe. *Energy Loss and Effective Charge of Heavy Ions in Aluminum*. Phys. Rev., 120 (1960).
6. J. Lindhard, M. Scharff, H.E. Schlott. *Range concepts and heavy ion ranges. (Notes on atomic collisions, II.)*. Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk, 33 (1963).
7. L.G. Glazov, P. Sigmund. *Nuclear stopping in transmission experiments*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 207 (2003).
8. F. Seitz, J.S. Koehler. *Displacement of atoms during radiation Solid State*. Solid State Phys. 2 (1956).
9. O. Peña-Rodríguez, J. Olivares, M. Carrascosa, Á. García-Cabañes, A. Rivera, F. Agulló-López. *Optical waveguides fabricated by ion implantation/irradiation: a Review*. Ion Implantation, IntechOpen (2012).
10. F. Agulló López. *Nuclear techniques applied to the solid-state problems. Part II*. Energia Nucl., 9 (1965).
11. D. A. Thompson. *High density cascade effects*. Rad. Eff. and Defect in Solids, 56 (1981).
12. M.L. Crespillo, O. Caballero-Calero, V. Joco, A. Rivera, P. Herrero, J. Olivares, F. Agulló-López. *Recrystallization of amorphous nanotracks and uniform*

layers generated by swift-ion-beam irradiation in lithium niobate. Appl. Phys. A, 104 (2011).

13. A. Meftah, J. M. Costantini, N. Khalfaoui, S. Boudjadar, J. P. Stoquert, F. Studer, M. Toulemonde. *Experimental determination of track cross-section in $Gd_3Ga_5O_{12}$ and comparison to the inelastic thermal spike model applied to several materials*. Nucl. Instrum. Methods B, 237 (2005).
14. M. Toulemonde, C. Dufour, A. Meftah, E. Paumier. *Transient thermal processes in heavy ion irradiation of crystalline inorganic insulators*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 166-167 (2000).
15. M. P. R. Waligorski, R. N. Hawn, R. Katz. *The radial distribution of dose around the path of a heavy ion in liquid water*. Nucl. Tracks and Radiat. Meas. 11 (1986).
16. Z. G. Wang, C. Dufour, E. Paumier, M. Toulemonde. *The sensitivity of metals under swift-heavy-ion irradiation: A transient thermal process*. J. Phys.: Condens. Matt. 6 (1994).
17. A. M. Prokhorov, Yu. S. Kuz'minov. *Physics and Chemistry of Crystalline Lithium Niobate*. Adam Hilger Series of Optics and Optoelectronics, Bristol (1990).
18. I. A. Baranov, Y. V. Martynenko, S. O. Tsepelevich, Y. N. Yavlinskii. *Inelastic sputtering of solids by ions*. Sov. Phys. Usp. 31 (1988).
19. C. Dufour, A. Audouard, F. Beuneu, J. Dural, J. P. Girad, A. Hairie, M. Levalois, E. Paumier, M. Toulemonde.. *A high-resistivity phase induced by swift heavy-ion irradiation of Bi: a probe for thermal spike damage?*. J. Phys.: Condens. Matt. 5 (1993).
20. S. Kase, K. Ohi. *Optical absorption and interband faraday rotation in $LiTaO_3$ and $LiNbO_3$* . Ferroelectrics, 8 (1974).
21. M. Toulemonde, C. Dufour, E. Paumier. *Transient thermal process after a high-energy heavy-ion irradiation of amorphous metals and semiconductors*. Phys. Rev. B., 46 (1992).

22. J. Vetter, R. Scholz, N. Angert. *Investigation of latent tracks from heavy ions in GeS crystals by high resolution TEM*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 91 (1994).
23. G.G. Bentini, M. Bianconi, M. Chiarini, L. Corraera, C. Sada, P. Mazzoldi, N. Argiolas, M. Bazzan, R. Guzzi. *Effect of low dose high energy O^{3+} implantation on refractive index and linear electro-optic properties in X-cut $LiNbO_3$: Planar optical waveguide formation and characterization*. J. Appl. Phys., 92 (2002).
24. J. Olivares, A. García-Navarro, G. García, A. Méndez, F. Agulló-López. *Optical determination of three-dimensional nanotrack profiles generated by single swift-heavy ion impacts in lithium niobate*. Appl. Phys. Lett., 89 (2006).
25. J. Olivares, G. García, A. García-Navarro, F. Agulló-López, O. Caballero, A. García-Cabañes. *Generation of high-confinement step-like optical waveguides in $LiNbO_3$ by swift heavy ion-beam irradiation*. Appl. Phys. Lett., 86 (2005).
26. F. Agulló-López, G. García, J. Olivares. *Lattice preamorphization by ion irradiation: Fluence dependence of the electronic stopping power threshold for amorphization*. J. Appl. Phys., 97 (2005).
27. G. García, F. Agulló-López, J. Olivares, A. García-Navarro. *Monte Carlo simulation of damage and amorphization induced by swift-ion irradiation in $LiNbO_3$* . J. Appl. Phys. 99 (2006).
28. G. Szenes. *General features of latent track formation in magnetic insulators irradiated with swift heavy ions*. Phys. Rev. B 51 (1995).
29. G. Szenes. *Thermal spike model of amorphous track formation in insulators irradiated by swift heavy ions*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 116 (1996).
30. G. Szenes. *Amorphous tracks in insulators induced by monoatomic and cluster ions*. Phys. Rev. B, 60 (1999).
31. G. Szenes. *A possible mechanism of formation of radiation defects in amorphous metals bombarded with high-energy heavy ions*. Mater. Sci. Forum, 97-99 (1992).

32. F. Agulló-López, G. García, J. Olivares. *Lattice preamorphization by ion irradiation: Fluence dependence of the electronic stopping power threshold for amorphization*. J. Appl. Phys. 97 (2005).
33. J. Olivares, G. García, F. Agulló-López, F. Agulló-Rueda, A. Kling, J.C. Soares. *Generation of amorphous surface layers in LiNbO₃ by ion-beam irradiation: thresholding and boundary propagation*. App. Phys. A, 81 (2005).
34. J. Olivares, G. García, F. Agulló-López, F. Agulló-Rueda, J. C. Soares, A. Kling. *Optical investigation of the propagation of the amorphous–crystalline boundary in ion-beam irradiated LiNbO₃*. Nucl. Instr. Meth. B, 242 (2006).
35. G.G. Bentini, M. Bianconi, M. Chiarini, L. Correr, C. Sada, P. Mazzoldi, N. Argiolas, M. Bazzan, R. Guzzi. *Effect of low dose high energy O³⁺ implantation on refractive index and linear electro-optic properties in X-cut LiNbO₃: Planar optical waveguide formation and characterization*. J. Appl. Phys., 92 (2002).
36. G. G. Bentini, M. Bianconi, L. Correr, M. Chiarini, P. Mazzoldi, C. Sada, N. Argiolas, M. Bazzan and R. Guzzi. *Damage effects produced in the near-surface region of x-cut LiNbO₃ by low dose, high energy implantation of nitrogen, oxygen, and fluorine ions*. J. Appl. Phys., 96 (2004).
37. J. Olivares, G. García, A. García-Navarro, F. Agulló-López, O. Caballero, A. García-Cabañes. *Generation of high-confinement step-like optical waveguides in LiNbO₃ by swift heavy ion-beam irradiation*. Appl. Phys. Lett., 86 (2005).
38. A. García Navarro. Tesis doctoral: *Irradiación con iones pesados de alta energía en dieléctricos para aplicaciones fotónicas guías de onda en LiNbO₃*. Universidad Autónoma de Madrid (2007).
39. J. Frenkel. *Kinetic Theory of Liquids*. Dover, New York (1995).
40. N. Itoh. *Self-trapped exciton model of heavy-ion track registration*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B, 116 (1996).
41. N. Itoh, and A. M. Stoneham. *Excitonic model of track registration of energetic heavy ions in insulators*. Nucl. Instr. and Meth. B 146 (1998).

42. A. J. Fisher, W. Hayes, A. M. Stoneham. *Structure of the self-trapped exciton in quartz*. Phys. Rev. Lett. 64 (1990).
43. F. Agulló-López, A. Méndez, G. García, J. Olivares, J. M. Cabrera. *Synergy between thermal spike and exciton decay mechanisms for ion damage and amorphization by electronic excitation*. Phys. Rev. B 74 (2006).
44. K. Nordlund. *Historical review of computer simulation of radiation effects in materials*. J. Nucl. Mater., 520 (2019).
45. J. F. Ziegler, J.P. Biersack. *The Stopping and Range of Ions in Matter*. En: Treatise on Heavy-Ion Science. Springer, Boston (1985).
46. J K. Nordlund. *Molecular dynamics simulation of ion ranges in the 1–100 keV energy range*. Comput. Mater. Sci., 3 (1995).
47. A. Prada Valverde. Tesis doctoral: *Estudios atomísticos de la respuesta a la irradiación de materiales ópticos con aplicación en plantas de fusión nuclear*. Univesidad Politécnica de Madrid (2017).
48. A. A. Blistanov, V.S. Bondarenko, N. V. Perelomova, F. N. Strizhevskaya, V.V. Tchkalova, M.P. Shaskolskaya. *Acoustic Crystals*. Nauka, Moscú (1982).
49. M. Nakamura, S. Higuchi, S. Takekawa, K. Terabe, Y. Furukawa, K. Kitamura. *Refractive indices in undoped and MgO-doped near-stoichiometric LiTaO₃ crystals*. Jpn. J. Appl. Phys., 41 (2002).
50. A. Bruner, D. Eger, M. B. Oron, P. Blau, M. Katz, S. Ruschin. *Temperature-dependent Sellmeier equation for the refractive index of stoichiometric lithium tantalate*. Opt. Lett., 28 (2003).
51. A. L. Alexandrovski, G. Foulon, L.E. Myers, R.K. Route, M.M. Fejer. *UV and visible absorption in LiTaO₃*. Proc. SPIE 3610 (1999).
52. M. Maragoni, R. Ramponi. *Nonlinear optical waveguides in stoichiometric lithium tantalate*. En: Ferroelectric Crystals for Photonic Applications. Springer Series in Materials Science, 91 (2009).
53. L. Tian, V. Gopalan, L. Galambos. *Domain reversal in stoichiometric LiTaO₃ prepared by vapor transport equilibration*. Appl. Phys. Lett., 85 (2004).

54. S. Miyazawa, H. Iwasaki. *Congruent melting composition of lithium metatantalate*. J. Cryst. Growth, 10 (1971).
55. Y. Xu. *Lithium niobate and lithium tantalate*. En: Ferroelectric Materials and their Applications. Elsevier, Ámsterdam (1991).
56. K. Kitamura, Y. Furukawa, K. Niwa, V. Gopalan, T.E. Mitchell. *Crystal growth and low coercive field 180° domain switching characteristics of stoichiometric LiTaO₃*. Appl. Phys. Lett., 73 (1998).
57. P.F. Bordui, R.G. Norwood, D.H. Jundt, M.M. Fejer. *Preparation and characterization of off-congruent lithium niobate crystals*. J. Appl. Phys., 71 (1992).
58. M. Katz, R.K. Route, D.S. Hum, K.R. Parameswaran, G.D. Miller, M.M. Fejer. *Vapor-transport equilibrated near-stoichiometric lithium tantalate for frequency-conversion applications*. Opt. Lett. 29 (2004).
59. I. Dolev, A. Ganany-Padowicz, O. Gayer, A. Arie, J. Mangin, G. Gadret. *Linear and nonlinear optical properties of MgO:LiTaO₃*. Appl. Phys. B., 96(2009).
60. S. Çabuk, A. Mamedov. *A study of the LiNbO₃ and LiTaO₃ absorption edge*. Turk. J. Phys., 22 (1998).
61. W. L. Bond. *Measurement of the refractive indices of several crystals*. J. Appl. Phys., 36 (1965).
62. K.S. Abedin, H. Ito. *Temperature-dependent dispersion relation of ferroelectric lithium tantalate*. J. Appl. Phys., 80 (1996).
63. A. Bruner, D. Eger, M.B. Oron, P. Blau, M. Katz, S. Ruschin. *Refractive index dispersion measurements of congruent and stoichiometric LiTaO₃*. Proc. SPIE 4628 (2002).
64. T. Suhara, M. Fujimura. *Waveguide nonlinear-optic devices*. Springer Series in Photonics, Berlín (2011).
65. V. Ya. Shur, E.V. Nikolaeva, E.I. Shishkin, V.L. Kozhevnikov, A.P. Chernykh, K. Terabe, K. Kitamura. *Polarization reversal in congruent and stoichiometric lithium tantalate*. Appl. Phys. Lett., 79 (2001).

66. V. Ya. Shur, A.R. Akhmatkhanov, M.A. Chuvakova, I.S. Baturin. *Polarization reversal and domain kinetics in magnesium doped stoichiometric lithium tantalate*. Appl. Phys. Lett., 105 (2014).
67. K. Mizuuchi, K. Yamamoto, T. Taniuchi. *Fabrication of first-order periodically domain-inverted structure in LiTaO₃*. Appl. Phys. Lett., 59 (1991).
68. K. Kitamura, Y. Furukawa, K. Niwa, V. Gopalan, T.E. Mitchell. *Crystal growth and low coercive field 180° domain switching characteristics of stoichiometric LiTaO₃*. Appl. Phys. Lett., 73 (1998).
69. I.P. Kaminow. *An Introduction to Electrooptic Devices*. Academic Press, Nueva York (1974).
70. A. Ashkin, G.D. Boyd, J.M. Dziedzic, R.G. Smith, A.A. Ballman, J.J. Levinstein, K. Nassau. *Optically-induced refractive index homogeneities in LiNbO₃ and LiTaO₃*. Appl Phys Lett., 9 (1966).
71. K. Buse, J. Imbrock, E. Krätzig, K.P. Peithmann. *Photorefractive effects in LiNbO₃ and LiTaO₃*. En: Photorefractive materials and their applications. Springer Series in Optical Sciences, 114 (2007).
72. A.M. Glass, D. von der Linde, D.H. Auston, T.J. Negran. *Excited state polarization, bulk photovoltaic effect and the photorefractive effect in electrically polarized media*. J. Electron. Mater., 4 (1975).
73. G.L. Tangonan, M.K. Barnoski, J.F. Lotspeich, A. Lee. *High optical power capabilities of Ti-diffused LiTaO₃ waveguide modulator structures*. Appl. Phys. Lett., 30 (1977).
74. W.B. Spillman, N.A. Sanford, R.A. Soref. *Optical waveguides in LiTaO₃ formed by proton exchange*. Opt. Lett., 8 (1983).
75. V. Ya. Shur. *Nano- and microdomain engineering of lithium niobate and lithium tantalate for piezoelectric applications*. En: Advanced Piezoelectric Materials. Elsevier (2017).
76. G. Lifante. *Integrated Photonics: Fundamentals*. John Wiley & Sons, Reino Unido (2003).

77. J.L. Jackel, C.E. Rice, J.J. Veselka. *Proton exchange for high-index waveguides in LiNbO₃*. Appl. Phys. Lett., 41 (1982).
78. Yu. N. Korkishko, V.A. Fedorov, S.M. Kostritskii, A.N. Alkaev, E.I. Maslennikov, E.M. Paderin, D.V. Apraksin, F. Laurell. *Proton exchanged LiNbO₃ and LiTaO₃ optical waveguides and integrated optic devices*. Microelectron. Eng., 69 (2003).
79. Yu. N. Korkishko, V.A. Fedorov. *Ion exchange in single crystals for integrated optics and optoelectronics*. Cambridge International Science Publishing (1999).
80. T. Findakly, P. Suchoski, F. Leonberger. *High-quality LiTaO₃ integrated-optical waveguides and devices fabricated by the annealed-proton-exchange technique*. Opt. Lett., 13 (1988).
81. Yu. N. Korkishko, V.A. Fedorov, T.M. Morozova, F. Caccavale, F. Gonella, F. Segato. *Reverse proton exchange for buried waveguides in LiNbO₃*. J. Opt. Soc. Am. A, 15 (1998).
82. V.A. Fedorov, Yu. N. Korkishko. Reverse proton exchange in lithium tantalate crystals. J. Opt. Commun., 15 (1994).
83. E. Glavas, L. Zhang, P.J. Chandler, P.D. Townsend. *Thermal stability of ion implanted LiTaO₃ and LiNbO₃ waveguides*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res B., 32 (1988).
84. V.V. Atuchin. *Causes of refractive indices changes in He-implanted LiNbO₃ and LiTaO₃ waveguides*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res B., 168 (2000).
85. K.M.Wang, F. Chen, H. Hu, J.H. Zhang, F. Lu, B.R. Shi, Q.M. Lu, C.Q. Ma. *Waveguide formation in LiTaO₃ and LiB₃O₅ by keV hydrogen ion implantation*. Opt. Commun., 196 (2001).
86. C. Mignotte. *Proton and helium implanted waveguides in pure and Nd-doped lithium tantalate*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 229 (2005).
87. L.L. Pang, Z.G. Wang, C.F. Yao, J.R. Sun, M.H. Cui, K.F. Wei, T. Shen, Y.B. Sheng, Y. Zhu, Y.F. Li, H.L. Chang, J. Wang, H. Zhu. *The study of damage*

- produced by H-ion and He-ion implantation in Lithium tantalate crystal.* J. Phys. Conf. Ser., 488 (2014).
88. L. Jentjens, K. Peithmann, K. Maier, H. Steigerwald, T. Jungk. *Radiation-damage-assisted ferroelectric domain structuring in magnesium-doped lithium niobate.* Appl. Phys. B., 95 (2009).
 89. M. Lilienblum, A. Ofan, Á. Hoffmann, O. Gaathon, L. Vanamurthy, S. Bakhru, H. Bakhru, R.M. Osgood Jr., E. Soergel. *Low-voltage nanodomain writing in He-implanted lithium niobate crystals.* Appl. Phys. Lett., 96 (2010).
 90. A. Ofan, M. Lilienblum, O. Gaathon, A. Sehrbrock, Á. Hoffmann, S. Bakhru, H. Bakhru, S. Irsen, R.M. Osgood Jr., E. Soergel. *Large-area regular nanodomain patterning in He-irradiated lithium niobate crystals.* Nanotechnology, 22 (2011).
 91. M. Jubera, J. Villarroel, A. García-Cabañes, M. Carrascosa, J. Olivares, F. Agullo-López, A. Mendez Jaque, J.B. Ramiro Díaz. *Analysis and optimization of propagation losses in LiNbO₃ optical waveguides produced by swift heavy-ion irradiation.* Appl. Phys. B, 107 (2012).
 92. J. Olivares, A. García-Navarro, G. García, A. Méndez, F. Agulló-López, A. García-Cabañes, M. Carrascosa, O. Caballero. *Nonlinear optical waveguides generated in lithium niobate by swift-ion irradiation at ultralow fluences.* Opt. Lett., 32 (2007).
 93. A. García-Navarro, J. Olivares, G. García, F. Agulló-López, S. García-Blanco, C. Merchant, J.S. Aitchison. *Fabrication of optical waveguides in KGW by swift heavy ion beam irradiation.* Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 249 (2006).
 94. J. Manzano-Santamaría, J. Olivares, A. Rivera de Mena, Agullo F. Lopez. *Electronic damage in quartz (c-SiO₂) by MeV ion irradiations: Potentiality for optical waveguiding applications.* Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 272 (2012).
 95. O. Caballero-Calero, A. García-Cabañes, M. Carrascosa, F. Agulló-López, J. Villarroel, M. Crespillo, J. Olivares. *Periodic poling of optical waveguides produced by swift-heavy-ion irradiation in LiNbO₃.* Appl. Phys. B, 95 (2009).

96. G. Fu, X.F. Qin, X.L. Wang. *Optical Waveguide Formed in LiTaO₃ Crystal by MeV C³⁺ Ion Implantation*. J. Korean Phys. Soc., 56 (2010).
97. G. Liu, R. He, S. Akhmadaliev, J.R. Vázquez de Aldana, S. Zhou, F. Chen. *Optical waveguides in LiTaO₃ crystals fabricated by swift C⁵⁺ ion irradiation*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 325 (2014).
98. C.J. Wetteland, K.E. Sickafus, V. Gopalan, J.N. Mitchell, T. Hartmann, M. Nastasi, C.J. Maggiore. *Radiation damage effects in ferroelectric LiTaO₃ single crystals*. Mater. Res. Soc. Symp. Proc. (1999).
99. P. Liu, Q. Huang, T. Liu, S.S. Guo, L. Zhang, Y.F. Zhou, X. Wang. *Visible and near-infrared waveguide properties in LiTaO₃ crystal produced by swift Ar⁸⁺ ion irradiation*. Appl. Phys. B, 108 (2012).
100. L.L. Pang, Z.G. Wang, J.R. Sun, C.F. Yao, K.F. Wei, T.L. Shen, M.H. Cui, Y.B. Zhu, Y.B. Sheng, Y.F. Li, H.L. Chang, J. Wang, H.P. Zhyu. *The energy loss effects on the absorption edge of LiTaO₃ irradiated by energetic heavy ions*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 307 (2013).
101. H. Ahlfeldt, J. Webjörn, G. Arvidsson. *Periodic domain inversion and generation of blue light in lithium tantalate waveguides*. IEEE Photon Tech. Lett., 3 (1991).
102. S. Matsumoto, E.J. Lim, H.M. Hertz, M.M. Fejer. *Quasiphase-matched second harmonic generation of blue light in electrically periodically-poled lithium tantalate waveguides*. Electron. Lett., 27 (1991).
103. J.P. Meyn, M.M. Fejer. *Tunable ultraviolet radiation by second-harmonic generation in periodically poled lithium tantalate*. Opt. Lett., 22 (1997).
104. K. Yamamoto, K. Mizuuchi, K. Takeshige, Y. Sasai, T. Taniuchi. *Characteristics of periodically domain-inverted LiNbO₃ and LiTaO₃ waveguides for second harmonic generation*. J. Appl. Phys., 70 (1991).
105. K. Yamamoto, K. Mizuuchi, T. Taniuchi. *Milliwatt-order blue-light generation in a periodically domain-inverted LiTaO₃ waveguide*. Opt. Lett., 16 (1991).

106. H. Murata, Y. Okamura. *Guided-wave optical wavelength-manipulating devices using electrooptic effect*. En: Photonic based on wavelength integration and manipulation. IPAP Books, Tokio (2005).
107. R.T. Denton, F.S. Chen, A.A. Ballman. *Lithium tantalate light modulators*. J. Appl. Phys., 38 (1967).
108. V. Gopalan, K.T. Gahagan, M. Kawas, Q.X. Jia, J.M. Robinson, T.E. Mitchell, T.E. Schlesinger, D.D. Stancil. *Integration of electro-optic lenses and scanners on ferroelectric LiTaO₃*. Integr. Ferroelectr., 25 (1999).
109. S.E. Stokowski. *Temperature noise and dielectric loss in pyroelectric detectors*. Appl. Phys. Lett., 29 (1976).
110. Centro de MicroAnálisis de Materiales (CMAM), Universidad Autónoma de Madrid. URL: <http://www.cmam.uam.es/>
111. A. Gottdang, D.J.W. Mous, R.G. Haitzma. *The novel HVEE 5 MV Tandetrone*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 190 (2002).
112. D.J.W. Mous. *Performance and Applications of the first HVE 5MV TandetronTM at the University of Madrid*. AIP Conf. Proc., 680 (2003).
113. A. Climent-Font, F. Pászti, G. García, M.T. Fernández-Jiménez, F. Agulló. *First measurements with the Madrid 5 MV tandem accelerator*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 219-220 (2004).
114. C. Pascual Izarra. Tesis doctoral: *Experimental determination of stopping forces for ions in matter*. Universidad Autónoma de Madrid (2004).
115. P.K. Tien, R. Ulrich, R.J. Martin. *Modes of propagating light waves in thin deposited semiconductor films*. Appl. Phys. Lett., 14 (1969).
116. P.K. Tien, R. Ulrich. *Theory of prism-film coupler and thin-film light guides*. J. Opt. Soc. Am., 60 (1970).
117. J.P. Gordon. *Optics of general guiding media*. Bell Syst. Tech. J., 45 (1966).
118. A. Gedeon. *Comparison between rigorous theory and WKB-analysis of modes in graded-index waveguides*. Opt. Commun., 12 (1974).

119. K. Chiang. *Construction of refractive-index profiles of planar dielectric waveguides from the distribution of effective indexes*. J. Light. Technol., 3 (1985).
120. J. Olivares, M.A. Díaz-García, J.M. Cabrera. *Direct measurement of ordinary refractive index of proton exchanged LiNbO₃ waveguides*. Opt. Commun., 92 (1992).
121. M. Born, E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon Press, Nueva York (1980)
122. Y. Okamura, S. Yoshinaka, S. Yamamoto. *Measuring mode propagation losses of integrated optical waveguides: a simple method*. Appl. Opt. 22 (1983).
123. B.M. Foley, P. Melman, K.T. Vo. *Novel loss measurement technique for optical waveguides by imaging of scattered light*. Electron. Lett., 28 (1992).
124. J.R. Tesmer, M. Nastasi. *Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis*. Materials Research Society, Pittsburgh (1975).
125. W. Chu, J.W. Mayer, M.A. Nicolet. *Backscattering spectrometry*. Academic Press, (1978).
126. M. Mayer. SIMNRA - Stopping and Range of Ions in Matter [Internet]. URL: <http://www.rzg.mpg.de/~mam/>
127. O. Peña-Rodríguez, M.L. Crespillo, P. Díaz-Nuñez, J.M. Perlado, A. Rivera, J. Olivares. *In situ monitoring the optical properties of dielectric materials during ion irradiation*. Opt. Mater. Express, 6 (2016).
128. V. Tormo-Marquez, M. Díaz-Hijar, M. Carrascosa, V.Ya. Shur, J. Olivares. *Low loss optical waveguides fabricated in LiTaO₃ by swift heavy ion irradiation*. Opt. Express, 27 (2019).
129. D.N. Nikogosian. *Nonlinear optical crystals: a complete survey*. Springer Science, Nueva York (2005).
130. Z. Zhang, I.A. Rusakova, W.K. Chu. *Amorphization and annealing of LiTaO₃ single crystal irradiated with Ar⁺ ions at 77 K*. J. Appl. Phys., 91 (2002).

131. C. Ma, F. Lu, Y. Ma. *Blistering and cracking of LiTaO₃ single crystal under helium ion implantation*. Appl. Phys. A, 118 (2015).
132. Z. Zhang, I.A. Rusakova, J. Wilson, R. Chu, W.K. Chu. *Thermal annealing of Ar ion bombarded lithium tantalate (LiTaO₃) single crystal*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 127-128 (1997).
133. Z. Zhang, I.A. Rusakova, W.K. Chu. *Preservation of original single domain phase in the implanted LiTaO₃ single crystal by using hot implantation*. Jpn. J. Appl. Phys., 38 (1999).
134. A. Rivera, J. Olivares, G. García, J.M. Cabrera, F. Agulló Rueda, F. Agulló-López. *Giant enhancement of material damage associated to electronic excitation during ion irradiation: The case of LiNbO₃*. Phys. Status Solidi A, 206 (2009).
135. A. Rivera, M.L. Crespillo, J. Olivares, G. García, F. Agulló-López. *Effect of defect accumulation on ion-beam damage morphology by electronic excitation in lithium niobate: A MonteCarlo approach*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 127-268 (2010).
136. W.J. Weber, E. Zarkadoula, O.H. Pakarinen, R. Sachan, M.F. Chisholm, P. Liu, H. Xue, K. Jin, Y. Zhang. *Synergy of elastic and inelastic energy loss on ion track formation in SrTiO₃*. | Sci. Rep., 5 (2015).
137. P. Liu, Y. Zhang, H. Xue, K. Jin, M.L. Crespillo, X. Wang, W.J. Weber. *A coupled effect of nuclear and electronic energy loss on ion irradiation damage in lithium niobate*. Acta Mater., 105 (2016).
138. K. Jin, Y. Zhang, W.J. Weber. *Synergistic effects of nuclear and electronic energy deposition on damage production in KTaO₃*. Mater. Res. Lett., 6 (2018).
139. N. Sellami, M.L. Crespillo, Y. Zhang, W.J. Weber. *Two-stage synergy of electronic energy loss with defects in LiTaO₃ under ion irradiation*. Mater. Res. Lett., 6 (2018).
140. M.L. Crespillo. Tesis doctoral: *Ion beam damage by electronic excitation with swift heavy ions in lithium niobate: mechanisms and nanostructuring for photonic applications*. Universidad Autónoma de Madrid (2011).

141. J.M. Santamaría. Tesis doctoral: *Daño por excitación electrónica en SiO₂ mediante irradiaciones con iones pesados de alta energía*. Universidad Autónoma de Madrid (2013).
142. K.S. Jheeta, D.C. Jain, R. Kumar, F. Singh, K.B. Garg. *Photoluminescence study of swift heavy ion (SHI) induced defect centers in sapphire*. J. Nucl. Mater., 353 (2006).
143. M. Tardío, R. Ramírez, R. González, Y. Chen, E. Alves. *Electrical conductivity of MgO crystals implanted with lithium ions*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 191 (2002).
144. R.C. da Silva, E. Alves, M.M. Cruz. *Conductivity behaviour of Cr implanted TiO₂*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 191 (2002).
145. M. Tardío, R. González, R. Ramírez, E. Alves. *Electrical conductivity in undoped α -Al₂O₃ crystals implanted with Mg ions*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 266 (2008).
146. B. Savoini, M. Tardío, R. Ramírez, E. Alves. *Surface morphology, thermal and electrical conductivity of α -Al₂O₃ single crystals implanted with Au and Ag ions*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 286 (2012).
147. M. Tardío, A. Egaña, R. Ramírez, J.E. Muñoz-Santiuste, E. Alves. *Anisotropy of electrical conductivity in dc due to intrinsic defect formation in α -Al₂O₃ single crystal implanted with Mg ions*. Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res. B, 379 (2016).
148. M.N. Palatnikov, V.A. Sandler, A.V. Yatsenko, N.V. Sidorov, S.V. Evdokimov, O.V. Makarova. *Anisotropic electrical conductivity and dielectric properties of LiTaO₃ crystals in the temperature range 290–900 K*. Inorg. Mater., 51 (2015).
149. A. Weidenfelder, J. Shi, P. Fielitz, G. Borchardt, K.D. Becker, H. Fritze. *Electrical and electromechanical properties of stoichiometric lithium niobate at high-temperatures*. Solid State Ion., 225 (2012).
150. N.F. Mott, E.A. Davis. *Electron processes in non-crystalline materials*. Oxford University Press (2012).

- 151. A.L. Efros, B.I. Shklovskii. *Coulomb gap and low temperature conductivity of disordered systems*. J. Phys. C: Solid State Phys., 8 (1975).
- 152. N.F. Mott: Metal-insulator transitions. Rev. Mod. Phys., 40 (1968).
- 153. B.I. Shklovskii. A.L. Efros. *Electronic Properties of Doped Semiconductors*. Springer Series in Solid-State Sciences, Berlín (1984).
- 154. C. Jacoboni. *Theory of electron transport in semiconductors: a pathway from elementary physics to nonequilibrium green functions*. Springer Series in Solid-State Sciences, Heidelberg (2010).

Lista de publicaciones

- Tormo-Márquez, V., Carrascosa, M., Olivares, J. (2019). Synergy effects on the damage from nuclear and electronic energy loss on swift heavy ion irradiation in LiTaO₃. (in press)
- Martinussen, S. M., Frentrop, R. N., Dijkstra, M., Segerink, F., Tormo-Márquez, V., Olivares, J., García-Blanco, S. M. (2019). Pedestal microdisks in potassium yttrium double tungstate. Opt. Mater. Express 9(8), 3371-3378.
- Tormo-Márquez, V., Díaz-Hijar, M., Carrascosa, M., Shur, V. Ya., Olivares, J. (2019) Low loss optical waveguides fabricated in LiTaO₃ by swift heavy ion irradiation. Opt. Express, 27 (6): 8696.
- Egaña, A., Tormo-Márquez, V., Torrente, A., Muñoz-Santiuste, J.E., Olivares, J., Tardío, M. (2018). Swift heavy ion irradiation induces enhancement in electrical conductivity of LiTaO₃ and LiNbO₃ crystals. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B., 435, 152-156.
- Martinussen, S. M., Frentrop, R. N., Dijkstra, M., Segerink, F., Tormo-Márquez, V., Olivares, J., García-Blanco, S. M. (2018). Pedestal disk resonator in potassium yttrium double tungstate. Proc. SPIE 10535.
- Frentrop, R. N., Tormo-Márquez, V., Olivares, J., García-Blanco, S. M. (2018). High-contrast slab waveguide fabrication in KY(WO₄)₂ by swift heavy ion irradiation. Proc. SPIE 10535.
- García, G., Preda, I., Díaz-Hijar, M., Tormo-Márquez, V., Peña-Rodríguez, O., Olivares, J., Sordini, A. (2016). Micro and nano-patterning of single-crystal diamond by swift heavy ion irradiation. Diam. Relat. Mater., 69, 1-7.
- García, G., Díaz-Hijar, M., Tormo-Márquez, V., Preda, I., Peña-Rodríguez, O., Olivares, J. (2015). Structural damage on single-crystal diamond by swift heavy ion irradiation. Diam. Relat. Mater., 58, 226-229.

Participación en congresos

- Damage in LiTaO_3 induced by high energy heavy ion irradiation: from nuclear to electronic damage. V. Tormo-Márquez, M. Díaz-Híjar, M. Jubera, M. Carrascosa, D.O. Alikin, V. Shur, J. Olivares. (Charla en REI-2017, Versalles)
- High energy heavy ion irradiations in LiTaO_3 : damage characterization and optimization of optical waveguides. V. Tormo-Márquez, M. Díaz-Híjar, M. Jubera, M. Carrascosa, D.O. Alikin, V. Shur, J. Olivares. (Póster en REI-2017, Versalles)
- Swift heavy ion irradiation induces enhancement in electrical conductivity of LiTaO_3 and LiNbO_3 crystals. A. Egaña, V. Tormo-Márquez, A. Torrente, J.E. Muñoz-Santiuste, J. Olivares, M. Tardío. (Póster en REI-2017, Versalles)
- Fabrication of optical waveguides in LiTaO_3 by means of swift heavy ion irradiation: characterization and comparison with LiNbO_3 . V. Tormo-Márquez, M. Díaz-Híjar, M. Jubera, M. Carrascosa, D.O. Alikin, V. Shur and J. Olivares. (Póster en REI-2015, Jaipur)
- Structural damage on single-crystal diamond by swift heavy ion irradiation. G. García, M. Díaz-Híjar, V. Tormo-Márquez, I. Preda, O. Peña-Rodríguez, J. Olivares. (Póster en REI-2015, Jaipur)

